

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11)特許出願公表番号

特表平8-507405

(43)公表日 平成8年(1996)8月6日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I
H O 1 M 8/04	K	9444-4K	
8/10		9444-4K	

審查請求 未請求 予備審查請求 有 (全 48 頁)

(21) 出願番号	特願平6-511303
(86) (22) 出願日	平成 5 年(1993)10月28日
(85) 翻訳文提出日	平成 7 年(1995) 4 月25日
(86) 国際出願番号	PCT/US93/10333
(87) 国際公開番号	WO94/10716
(87) 国際公開日	平成 6 年(1994) 5 月11日
(31) 優先権主張番号	07/970,614
(32) 優先日	1992年11月3日
(33) 優先権主張国	米国 (US)

(71)出願人 バラード パワー システムズ インコーポレイティド  
カナダ国, プリティッシュ コロンビア  
ブイ7ビー 3エヌ4, ノース パンク  
パー, ユニット 107, ウェスト ファー  
スト ストリート 980

(71)出願人 ウィルキンソン, デビッド ビー.  
カナダ国, プリティッシュ コロンビア  
ブイ7ケー 1ダブリュ4, ノース パン  
クパー, コールマン ストリート 1391

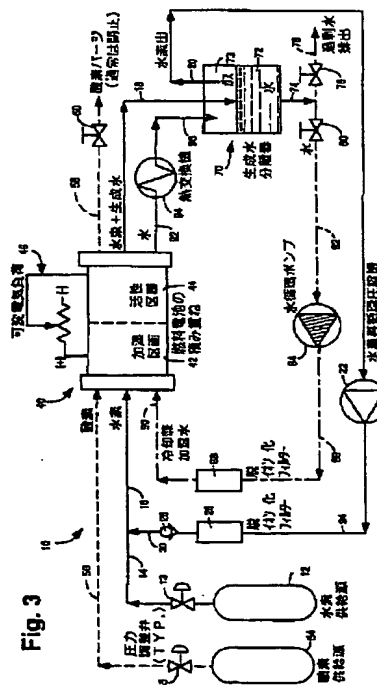
(74)代理人 弁理士 石田 敏 (外3名)

**最終頁に続く**

(54)【発明の名称】 アノードでの水分離を含む固体ポリマー燃料電池設備

(57) 【要約】

固体ポリマー燃料電池発電設備（１０）は、カソードに蓄積された水の実質的な部分を出口燃料流（１８）へと取り除く。この設備は、酸化剤供給源（５４）として実質的に純粋な酸素が用いられる行き詰まり方式での、又は希釈された酸化剤源、炭化水素酸素含有空気が酸化剤の供給源として用いられる低酸素化学量論（stoichiometry）を用いての、水素／酸素燃料電池（１）の作動を可能にする。この供給方式は、これによって、実質的に純粋な酸素で作動する方式においては、酸素再循環ポンプの必要性を排除し、希釈された酸化剤流で作動する方式において酸化剤流を圧縮する寄生の負荷を実質的に減らす。



**【特許請求の範囲】****1. 次のものを含む発電設備：**

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 次のものを含む少なくとも1つの燃料電池を含む燃料電池の積み重ね

：

(1) 前記入口燃料流を前記アノードの触媒活性部分に送るための入口を有するアノードであって、前記燃料流からカチオンを及び出口燃料流を生成するもの；

(2) 前記入口酸化剤流を前記カソードの触媒活性部分に送ってこの酸化剤流からアニオンを生成するための入口を有するカソード（前記アニオンは前記カチオンと反応して前記カソードで水を生成する）；

(3) 前記アノード及び前記カソードの間に配置されたイオン交換膜であって、前記アノードから前記カソードへのカチオンの移動を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの；並びに

(4) 前記アノードと前記カソードの間で電流を導通させる電気流路；

(D) 前記出口燃料流から水を除いて除湿された燃料流及び分離された水流を作るための水分離器；

ここに、前記カソードに蓄積された水の実質的な部分は前記出口燃料流中に吸収される。

2. 前記入口酸化剤流の化学量論が約2.0未満である請求の範囲1の設備。

3. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除

湿された燃料流が前記入口燃料流に再循環される請求の範囲1の設備。

4. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の変換過程からの副生物であり、前記除湿された燃料流がこの設備からガス抜きされる請求の範囲1の設備。

5. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素ガスであり、前記入口酸化剤流の化学量論が約1.0であり、前記酸素ガスが前記カソードで実質的に完全に消費される請求の範囲1の設備。

6. 前記カソードが更に通常は閉じたパージバルブを有し、前記パージバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求の範囲5の設備。

7. 前記入口酸化剤流が酸素含有空気を含み前記カソードが更に出口酸化剤流を生成し、前記酸化剤流が前記装置からガス抜きされる請求の範囲1の設備。

8. 更に前記出口酸化剤流から水を除いて除湿された酸化剤流及び除去された水流を生成するための水分離器を含む請求の範囲7の設備。

9. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 入口冷却水流；

(D) 次のものを含む加湿組み立て品：

(1) 燃料加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口燃料流へ水を与えて加湿された燃料流を生成する手段とを含む少なくとも1つの燃料加湿区画；

(2) 酸化剤加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入

口酸化剤流へ水を与えて加湿された酸化剤流を生成する手段とを含む少なくとも1つの酸化剤加湿区画；

(E) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 加湿された燃料流からカチオンを生成するための、加湿された燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 加湿された酸化剤流からアニオンを生成するための、加湿された酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって

、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記加湿された燃料流を前記加湿された酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電気流路；

(2) 入口冷却水流を電気化学的に活性な区画に送ってこれと熱接触させて、前記活性区画内で発生した熱を吸収し出口冷却水流を生成する入口を有する少なくとも1つの冷却剤通路；

(F) 前記出口冷却水流から熱を除いて冷やされた冷却水流を作り出すための熱交換器；

(G) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(H) 前記水分離器からの分離された水流及び前記熱交換器からの冷やされた冷却水流を受け取るための貯蔵器；

ここに、前記入口冷却水流は前記貯蔵器から引き出される。

10. 前記出口冷却水流が、前記燃料加湿供給源及び前記酸化剤加湿水供給源の内の少なくとも1つに供給される請求の範囲9の設備。

11. 前記冷却水流が、前記燃料加湿供給源及び前記酸化剤加湿水供給源の両方に供給される請求の範囲10の設備。

12. 前記水分離器及び前記貯蔵器が一体であり、前記貯蔵器内に含まれる水が前記出口燃料流からの水の凝縮を促進する請求の範囲9の設備。

13. 前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水を与える手段が、前記燃料加湿水供給源をうけとるための室、前記入口燃料流を受け取るための室、及び前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水を輸送して加湿された燃料流を生成するための前記両室の間に介在する水輸送膜を含む請求の範囲9の設備。

14. 前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水を与える手段が、前記酸化剤加湿水供給源をうけとるための室、前記入口酸化剤流を受け取るための室、及び前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水を輸送して加湿された酸化剤流を生成するための前記両室の間に介在する水輸送膜を含む請求の範囲9の設備。

15. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記入口燃料流に再循環される請求の範囲9の設備。

16. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の変換からの副生物であり、前記除湿された燃料流が前記設備からガス抜きされる請求の範囲9の設備。

17. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素であり、前記酸素ガスが前記カソードで実質的に完全に消費される請求の範囲9の装

置。

18. 前記カソードが更に通常は閉じたパージバルブを有し、前記パージバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求の範囲17の設備。

19. 前記入口酸化剤流が酸素含有空気を含み前記カソードが更に出口酸化剤流を生成し、前記酸化剤流が前記装置からガス抜きされる請求の範囲9の設備。

20. 更に前記出口酸化剤流から水を除いて除湿された酸化剤流及び除去された水流を生成するための水分離器を含み、前記貯蔵器が前記除去された水流を前記水分離器から受け取る請求の範囲9の設備。

21. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 次のものを含む加湿組み立て品：

(1) 燃料加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口燃料流へ水を与えて加湿された燃料流を生成する手段とを含む少なくとも1つの燃料加湿区画；

(2) 酸化剤加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口酸化剤流へ水を与えて加湿された酸化剤流を生成する手段とを含む少なくとも1つの酸化剤加湿区画；

(D) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 加湿された燃料流からカチオンを生成するための、加湿された燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口

燃料流とを有するアノード；

(b) 加湿された酸化剤流からアニオンを生成するための、加湿された酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記加湿された燃料流を前記加湿された酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電气流路；

(E) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(F) 前記水分離器からの分離された水流を受け取るための貯蔵器；

ここに、燃料加湿水供給源の少なくとも1つ及び酸化剤加湿水供給源の内の少なくとも1つは前記貯蔵器から取り出される。

22. 前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水を与える手段が、前記燃料加湿水供給源をうけとるための室、前記入口燃料流を受け取るための室、及び前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水を輸送して加湿された燃料流を生成するための前記両室の間に介在する水輸送膜を含む請求の範囲21の設備。

23. 前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水を与える手段が、前記酸化剤加湿水供給源をうけとるための室、前記入口酸化剤流を受け取るための室、及び前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水を輸送して加湿された酸化剤流を生成するための前記両室の間に介在する水輸送膜を含む請求の範囲21の設備。

24. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記入口燃料流に再循環される請求の範囲21の設備。

25. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の変換からの副生物であり、前

記除湿された燃料流が前記設備からガス抜きされる請求の範囲21の設備。

26. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素であり、前記酸素ガスが前記カソードで実質的に完全に消費される請求の範囲21の装置。

27. 前記カソードが更に通常は閉じたパージバルブを有し、前記パージバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求の範囲26の設備。

28. 前記入口酸化剤流が酸素含有空気を含み前記カソードが更に出口酸化剤流を生成し、前記酸化剤流が前記装置からガス抜きされる請求の範囲21の設備。

29. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 入口冷却水流；

(E) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 入口燃料流からカチオンを生成するための、入口燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 入口酸化剤流からアニオンを生成するための、入口酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電氣流路；

(2) 入口冷却水流を電気化学的に活性な区画に送りこれと熱接触させて、前記活性区画内で発生した熱を吸収し出口冷却水流を生成する入口を有する少なくとも1つの冷却材通路；

(F) 前記出口冷却水流から熱を除いて冷やされた冷却水流を作り出すための熱交換器；

(G) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(H) 前記水分離器からの分離された水流及び前記熱交換器からの冷やされた冷却水流を受け取るための貯蔵器；

ここに、前記入口冷却水流は前記貯蔵器から引き出される。

30. 前記水分離器及び前記貯蔵器が一体であり、前記貯蔵器に含まれる水が前記出口燃料流からの水の凝縮を促進する請求の範囲29の設備。



## 【発明の詳細な説明】

### アノードでの水分離を含む個体ポリマー燃料電池設備

#### 発明の分野

本発明は電気化学的燃料電池に関する。より詳しくは、本発明は実質的に純粋な及び／又は不純な燃料及び酸化剤流を用いる個体ポリマー燃料電池設備であって、カソードに蓄積される実質的な部分の水をアノードの出口燃料流中に除くものに関する。

#### 発明の背景

電気化学的燃料電池は燃料と酸化剤を電気及び反応生成物に変換する。燃料として水素を、酸化剤として酸素を用いる電気化学的燃料電池においては、反応生成物は水である。そのような燃料電池は、一般に個体ポリマー電解質又はイオン交換膜が多孔性の導電性のシート材料、典型的には炭素繊維紙から形成された2つの電極の間に配置されてなる、膜電極集成体（「MEA」）を用いる。このMEAは、望みの電気化学的反応を引き起こすために、典型的には微細な粉末状の白金の形をした触媒層を、各膜／電極界面に含む。前記電極は電氣的に接続されて、両電極の間の外側負荷に電子を導通させる通路を提供する。

アノードにおいて、この燃料は多孔性電極材料を透過し、触媒層で反応してカチオンを形成し、このカチオンはこの膜を通してカソードへ移行する。カソードにおいて、酸素含有ガス供給体は、触媒層で反応しアニオンを形成する。カソードで形成されたアニオンは前記カチオンと反応して反応生成物を形成する。

燃料として水素を、酸化剤として酸素含有空気（又は実質的に純

粋な酸素）を用いる電気化学的燃料電池においては、アノードにおける触媒反応は、燃料供給物から水素カチオン（プロトン）を生成する。前記イオン交換膜はアノードからカソードへの水素イオンの移動を促進する。水素イオンを導通することに加えて、この膜は水素含有燃料流を酸素含有酸化剤流から隔離する。カソードにおいて、酸素は触媒層において反応してアニオンを形成する。カソードで形成されるアニオンは膜を横切ってきた水素イオンと反応し、反応生成物として液体の水を形成する。

ペルフルオロスルフォンイオン交換膜、例えば商品名N a f i o nのもとにD u P o n t 社から販売されているものは、イオン輸送を起こすためには、水和されているか、又は水分子で飽和されていなければならない。カチオンがそのようなペルフルオロスルフォン膜を通して輸送されるときは、これらカチオンに会合している水分子も輸送されることは、一般に認められている。この現象は、ときどき「水ポンピング (w a t e r p u m p i n g)」と呼ばれ、膜のアノード側からカソード側への正味の水の流れをもたらす。従って、水ポンピング現象を示す膜は、もし水素イオン (プロトン) と共に輸送される水が補給されなければ、アノード側を乾燥させてしまう。そのような補給は、典型的には、燃料流を電池中に導入する前に水素含有燃料流を加湿することによって、提供される。同様に、カソード側で膜が乾燥するのを防ぐために、燃料電池中に酸化剤流を導入するに先立って酸素含有酸化剤流を一般に加湿する。それ故、これらカチオン交換膜を用いる燃料電池は、水ポンピング現象によって膜を横切って輸送される水、及び水素イオンと酸素の反応からカソードで形成される生成水の両方によって蓄積される水をカソード (酸化剤) 側から除く必要がある。

カソードでの水の蓄積は、いくつかの理由で問題がある。第1に

、触媒層の近くに液体の水があると、触媒の反応体への接近が減り、その結果、燃料電池の電力が減る。この現象はときどき「フラッディング (f l o o d i n g)」と呼ばれている。第2に、カソードでの液体水の蓄積は水がカソードを透過して触媒に行くのを妨げ、やはり燃料電池の電力の損失をもたらす。第3に、カソードで液体水が過剰に蓄積すると、付近の膜に物理的変化を生じ、膜の局部的膨潤及び膨張を引き起こす。これとは反対に、脱水は膜の乾燥と収縮を引き起こし、電極触媒の界面において対応する機械的応力を生じる。

従来の水除去法は、一般にカソードに蓄積した水を、カソード触媒層からカソードを出る酸化剤流へ連れ去るものである。従来の水除去法の1つは、カソードに入れた毛細管を用いてカソードから、蓄積された水を吐かせる、即ち送り出すことである。従来の水除去法の他の1つは、カソード内に網を用いて触媒層から水を連れ去ることである。従来の水除去法のさらに他の方法は、組成物水性物質

、例えばポリテトラフルオロエチレン（「PTFE」；商品名テフロン）を、カソードシート材料中に入れ、蓄積された水をカソードから去るように強制することである。これらの従来の水除去法は次の理由で不利である：

（1）それらは、膜／電極触媒層からカソードの多孔性構造体へ水を追い出す必要がある；

（2）液体の水が存在すると、多孔性ガス拡散電極の隙間を通る酸化剤の流れを制限する；

（3）酸化剤流通路中に液体水が存在すると、この流路中の酸化剤ガスの流れを制限するおそれがある。

アノードでの水除去を含む設備において、水はカソード側から膜を通して引き離されてアノード出口流中へ入り、一方、水は膜／電

極触媒の界面で形成され、酸化剤ガスが自由に活性触媒部位に拡散するようになっている。

米国特許出願N<sup>o</sup>. 07/641, 601は（1991年1月15日）には、XUS 13204.10なる商品名の下にDow社から販売されている新しいタイプの実験用ペルフロオロスルホンイオン交換膜は、膜を通しての水素イオンの輸送に結びついた水ポンピング現象をさほど示さないようであることが開示された。従って、Dowの実験用膜は、Nafion型の膜のように大きな水素イオンの輸送力を持っていないようである。このDowの実験用膜における水ポンピングの減少は輸送された水のカソードでの蓄積を減らし、通常はカソードで生じる全ての水の除去を単にアノード側で生じさせる。先の特許出願に示したように、アノード側での水の除去もNafion型膜でも行われる。

上に論じたように、イオン交換膜をととしての水素イオン伝導率は、一般に水分子の存在を必要とする。燃料と酸化剤ガスは、それ故それらを電池に導入する前に加湿してMEA内の膜の水飽和を維持する。通常、燃料と酸化剤ガスは、各ガスを水交換膜の片側に流し、脱イオン水をこの膜の反対側に流すことによって加湿する。膜が望ましくないイオンによって汚染されるのを防止するために、脱イオン水が好ましい。そのような膜ベースの加湿装置において、水は膜を通して

燃料及び酸化剤ガスに移行する。N a f i o n は、そのような用途において適当で便利な加湿膜材料であるが、他の商業的に入手可能な水交換膜も適当である。他の非膜ベースの加湿法も用いる。例えば、前記ガスを蒸発室中で直接水に暴露しこのガスに蒸発した水を吸収させることができる。

燃料電池の作動温度及び圧力で、又はこれにできるだけ近い温度及び圧力で、燃料及び酸化剤ガスを加湿するのが一般に好ましい。

空気のようなガスが水を吸収する能力は温度及び圧力の変化と共に大幅に変化する。燃料電池作動温度より大幅に低い温度での空気（酸化剤）流の加湿は、結局は膜を脱水するであろう。従って、加湿機能を燃料電池の積み重ねの活性部分に集中し、燃料と酸化剤流を前記積み重ねの活性区画とほぼ同じ温度及び圧力の条件にすることが好ましい。そのような集中された装置においては、前記電池の作動温度であるかこれに近い温度である、活性区画からの冷却水流が加湿用水流として用いられる。同様に、燃料及び酸化剤流を一般にはマニホールド又はヘッダーを経由して活性区画へ送り、それぞれを電池温度に条件付け、その後それらを加湿区画へ送る。

活性区画の冷却水流を加湿区画の加湿水と集積することに加えて、燃料電池生成水流を冷媒流と集積し、これによって燃料電池の積み重ね中で電気化学的に発生する生成水をこの積み重ねの温度を調節するのに用いるのも有利である。これに関して、生成水を冷媒として使用すると別な外からの冷却流体を供給する必要性を回避することができる。それは、前記電池で発生した水はそれ自体適当な冷却流体であるからである。比較的温かい生成水流を用いて活性区画を作動温度に上げることができる始動時には、生成水を冷却流体として用いることは有利である。

アノードの出口燃料流において、蓄積された水を除去させるような燃料電池の設計と作動条件を使用すれば、いくつかの利点を得られる。特に、アノード側での水除去は、水素／酸素燃料電池の作動をカソード即ち酸素側において「行き詰まり（dead-ended）」状態にさせる。即ち、酸素含有酸化剤流はカソードに供給されて実質的に完全に消費され、本質的にカソードから出口流を生成

しない。従って、行き詰まり作動は酸素再循環ポンプの必要性をなくす。酸素の再循環ポンプは高価であり、水素／酸素燃料電池を通

って循環する加湿された酸化剤流のような湿った酸素含有流の腐食作用の故に、維持が困難である。燃料電池設備から酸素再循環ポンプを除去することは、この設備の全体のコストを下げ、酸素の漏れ及び燃焼の可能性を減らすので、燃料電池の信頼性を改善する。酸素再循環ポンプを除くことは、この燃料電池設備の寄生の（ホテル（hotel））負荷を減らし、酸素再循環ポンプの作動によって消費される代わりに外部負荷へ送りだすのに役立つ燃料電池設備からの電力の割合を高くする。

この燃料電池のアノード側から蓄積された水を除去すると、また、酸化剤として空気を用いるときに設備に利点をもたらす。以下により詳細に説明するように、アノードから水を除去すると、比較的低い空気流速で燃料電池を効率的に作動することができる。用語「化学量論（stoichiometry）」を、ガス流速を特徴付けるために用いる。ここで用いるように、化学量論は燃料電池に供給された反応体の量対燃料電池で消費された反応体の量の比をいう。 $H_2$ 化学量論1.0とは、燃料電池で消費された水素の量が燃料電池に供給された水素の量に等しいことをいう。行き詰まりの酸素で作動される燃料電池においては酸素の化学量論は1.0であり、燃料電池に供給された酸素の量は実質的に完全に消費されている。同様に、 $H_2$ 化学量論2.0は燃料電池に供給された水素の量は燃料電池で消費された水素の量の2倍であることを意味する。

アノードでの水の除去によって可能になる低い酸素流の化学量論は、酸素流を圧縮するのに必要な寄生の負荷を減らす。薄い酸化剤流、例えば酸素含有空気で作動する設備中において、酸化剤流を圧縮するに必要な電力は実質的で大きな寄生の負荷の代表である。寄生の負荷は酸化剤化学量論に直接比例するので、酸化剤化学量論における減少は寄生の負荷を減らし、これによって外部の電気負荷に

対してこの設備から引き出しうる正味の電力を改善する。

最近、燃料として不純な水素を用いる電気化学的燃料電池を作動するための方

法を識別するための努力が払われてきた。実質的に純粋な水素を用いて作動する燃料電池設備は、純粋な水素ガスを製造し貯蔵するのが高価であるから、一般に不利である。加えて自動車の及び輸送機関への電気化学的燃料電池の使用における純粋で瓶詰された水素にとって、液体燃料を使用するのが好ましい。

アノードでの水除去も、不純な水素が燃料源として用いられるとき、設備に利益をもたらす。燃料電池の適正な設計及び作動条件によって、蓄積された水は排出燃料流中に除かれ、これによってそのような燃料電池設備において、上記の設備の利点を維持させたまま行き詰まりの酸素又は低化学量論での作動を可能にする。

従って、本発明の1つの目的は、カソードに蓄積された水をアノードの出口燃料流中に除き、これによって酸化剤流の再循環を避ける個体ポリマー燃料電池設備を提供することである。

本発明の他の目的は、アノード側での水の除去を含む個体ポリマー燃料電池設備であって、実質的に純粋な燃料流、例えば瓶詰した水素、及び不純な燃料流、例えば炭化水素の水素への転化から生ずるものを用いて作動しうるものを提供することである。

本発明の更に他の目的は、アノード側での水の除去を含む個体ポリマー燃料電池設備であって、実質的に純粋な酸化剤流、例えば瓶詰した酸素、及び不純な酸化剤流、例えば酸素含有空気を用いて作動しうるものを提供することである。

#### 発明の要約

上記及び他の目的は、カソードに蓄積された水がアノードの出口燃料流中に除かれる、個体ポリマー燃料電池発電設備によって達成

される。

この設備は次のものを含む：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 次のものを含む少なくとも1つの燃料電池を含む燃料電池の積み重ね

：

(1) 入口燃料流をアノードの触媒活性部分に送ってこの燃料流からカチオンを生成するための入口及び出口燃料流を有する前記アノード；

(2) 入口酸化剤流をカソードの触媒活性部分に送ってこの酸化剤流からアニオンを生成するための入口を有するカソード（前記アニオンは前記カチオンと反応してカソードで水を生成する）；

(3) 前記アノード及びカソードの間に配置されたイオン交換膜であって、アノードからカソードへのカチオンの移動を促進し、入口燃料流を入口酸化剤流から隔離するもの；並びに

(4) アノードとカソードの間で電流を導通させる電气流路；並びに

(D) 出口燃料流から水を除いて除湿された燃料流及び分離された水流を作るための水分離器。

カソードに蓄積された水の実質的な部分は出口燃料流中に吸収される。

ここで用いている「除湿された」とは、流体流の相対湿度（与えられた温度及び圧力でガスが水で飽和されているときの同じ割合に対するこのガスのモル当たりの水のモル量）が減ったことを意味する。換言すれば、除湿された流れは未だ流れ中に水を持っているが、存在する水の相対量は除湿される前の流れ中に含まれているもの

よりも少ない。

好ましい設備において、入口酸化剤流の化学量論は約2.0よりも少ない。入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスを含む設備においては、除湿された燃料流は、好ましくは入口燃料流へ再循環される。ときどき、再循環水素のいくらかをバージし、これによって、例えばカソードからの膜を横断して拡散した窒素のような蓄積したアノードからの不純物を排出するのが望ましいであろう。

入口燃料流が水素ガス及び炭化水素変換過程からの副生物である設備であるときは、除湿された燃料流は好ましくはこの設備からガス抜きをし、これによって蓄積された不純物、例えば二酸化炭素、をアノードから排出する。入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素である設備においては、入口酸化剤流の化学量論は好ましくは約1.0であり、従って酸素ガスはカソードで実質的に完全に消費されてい

る。そのような好ましい設備において、カソードは好ましくは更に通常は閉じているパージバルブを有し、これはこの装置から入口酸化剤流を周期的にガス抜きし、これによって蓄積された不純物をカソードから排出するものである。入口酸化剤流が酸素含有空気を含み、カソードが更に出口酸化剤流を生成するときは、この出口酸化剤流は、好ましくはこの設備からガス抜きされる。

アノードでの水除去を含む設備において、カソードに蓄積された水のいくらかは、カソード出口流でも除去されるが、同時にカソードに蓄積された水のいくらかは、アノード出口流で除去される。そのような例において、好ましい設備は更に出口酸化剤流からの水を水を除くための水分離器を含み、除湿された酸化剤流及び除去された水流を生成する。

他の態様においては、カソードに蓄積した水はアノード出口流中に除かれ、そのように除かれた水は冷却剤及び反応体加湿用水源の

両方として用いられる。そのような設備は次のものを含む：

- (A) 水素含有入口燃料流；
- (B) 酸素含有入口燃料流；
- (C) 入口冷却水流；
- (D) 次のものを含む加湿組み立て品：

(1) 燃料加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口燃料流へ水を与えて加湿された燃料流を生成する手段とを含む少なくとも1つの燃料加湿区画；

(2) 酸化剤加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口酸化剤流へ水を与えて加湿された酸化剤流を生成する手段とを含む少なくとも1つの酸化剤加湿区画；

- (E) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 加湿された燃料流からカチオンを生成するための、加湿された燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード



;

(b) 加湿された酸化剤流からアニオンを生成するための、加湿された酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記加湿された燃料流を前記加湿された酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電気流路；

(2) 入口冷却水流を電気化学的に活性な区画に送ってこれと熱接触させて、前記活性区画内で発生した熱を吸収し出口冷却水流を生成する入口を有する少なくとも1つの冷却剤通路；

(F) 前記出口冷却水流から熱を除いて冷やされた冷却水流を作り出すための熱交換器；

(G) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(H) 前記水分離器からの分離された水流及び前記熱交換器からの冷やされた冷却水流を受け取るための貯蔵器。

前記入口冷却水流は前記貯蔵器から引き出される。

好ましい設備において、前記出口冷却水流は、燃料加湿水供給源及び酸化剤加湿水供給源のうちの少なくとも1つに供給される。前記冷却材流は、最も好ましくは燃料加湿水供給源及び酸化剤加湿水供給源の両方に供給される。

好ましい設備において、前記水分離器及び貯蔵器は一体であり、貯蔵器内に含まれる水は出口燃料流からの水の凝縮を促進する。

各反応体の加湿水供給源から入口反応体流に水を与える好ましい手段は、反応体加湿水供給源を受け取る室、前記入口反応体流を受け取る室、及び前記両室の間に配置された、反応体の加湿水供給源から入口反応体流に水を輸送して、加湿された反応体流を生成する水輸送膜を含む。

更に他の態様においては、カソードに蓄積した水はアノード出口流中に除かれ

、そのように除かれた水は加湿水源として用いられる。そのような設備は次のものを含む：

- (A) 水素含有入口燃料流；
- (B) 酸素含有入口燃料流；
- (C) 次のものを含む加湿組み立て品：

(1) 燃料加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口燃料流へ水を与えて加湿された燃料流を生成する手段とを含む少なくとも1つの燃料加湿区画；

(2) 酸化剤加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口酸化剤流へ水を与えて加湿された酸化剤流を生成する手段とを含む少なくとも1つの酸化剤加湿区画；

(D) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 加湿された燃料流からカチオンを生成するための、加湿された燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 加湿された酸化剤流からアニオンを生成するための、加湿された酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記加湿された燃料流を前記加湿された酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電氣流路；

(E) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(F) 前記水分離器からの分離された水流を受け取るための貯蔵器。

燃料加湿水供給源の少なくとも1つ及び酸化剤加湿水供給源の内

の少なくとも1つは前記貯蔵器から取り出される。

更に他の態様においては、カソードに蓄積した水はアノード出口流中に除かれ、そのように除かれた水は冷却水源として用いられる。そのような設備は次のものを含む：

- (A) 水素含有入口燃料流；
- (B) 酸素含有入口燃料流；
- (C) 入口冷却水流；
- (E) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 入口燃料流からカチオンを生成するための、入口燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 入口酸化剤流からアニオンを生成するための、入口酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電气流路；

(2) 入口冷却水流を電気化学的に活性な区画に送りこれと熱接触させて、前記活性区画内で発生した熱を吸収し出口冷却水流を生成する入口を有する少なくとも1つの冷却材通路；

(F) 前記出口冷却水流から熱を除いて冷やされた冷却水流を作

りだすための熱交換器；

(G) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(H) 前記水分離器からの分離された水流及び前記熱交換器からの冷やされた冷却水流を受け取るための貯蔵器。

前記入口冷却水流は前記貯蔵器から引き出される。

#### 図面の簡単な説明

図1は、Dowの実験用膜を用いた燃料電池についての時間の関数としての電池電圧のプロットであり、従来の燃料電池におけるカソード出力流 (output stream) をとおる流れ (flow) の停止の電池電圧に対する影響を示すものである。

図2は、2つの異なったH<sub>2</sub>化学量論及び圧力低下のもとで作動する、従ってアノードでの水除去の2つの異なった速度で作動する燃料電池についての空気の化学量論の関数としての電池電圧の2つのプロットを示す。

図3は、アノードでの水除去を含み、燃料流として実質的に純粋な水素を、そして酸化剤流として実質的に純粋な酸素を用いる燃料電池発電設備の概略流れ図である。

図4は、アノードでの水除去を含み、燃料流として実質的に純粋な水素を、そして酸化剤流として酸素含有空気を用いる燃料電池発電設備の概略流れ図である。

図5は、アノードでの水除去を含み、燃料流として不純な水素を、そして酸化剤流として実質的に純粋な酸素を用いる燃料電池発電設備の概略流れ図である。

図6は、アノードでの水除去を含み、燃料流として不純な水素を、そして酸化剤流として酸素含有空気を用いる燃料電池発電設備の

概略流れ図である。

図7は、図3～6に概略的に示された個体ポリマー燃料電池の積み重ねの分解組み立て側面図である。

#### 好ましい態様の詳細な説明

先ず図1にかえて、Dowの実験用膜を用いた燃料電池についての時間の関数としての電池電圧のプロットは、アノード水の除去を伴い又は伴わずに、カソード出力流 (output stream) をとおる流れ (flow) の停止の電池電圧に対する影響を示す。図1の燃料電池において、Dowの実験用膜はカソードとして働く多孔性ガス拡散電極に6%のPTFEを含有せしめたものを用

いた。加湿した実質的に純粋な酸素及び水素反応体流を用い、一定の250 amp s (電極触媒面積の平方フィートあたり1000アンペア)で運転される。実験の最初の部分(点A及びBの間)において、酸素は行き詰まりとなり、以下の一定の運転条件を維持した:電池温度=80℃、30/30 psig (0.21/0.21 MPaゲージ) O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> (入口圧力)、H<sub>2</sub>化学量論=約2.0、H<sub>2</sub>圧力低下=3.2 psi (22 kPa) (前記アノードの入口と出口の間で)。この実験の第2の部分では(点B及びCの間)、H<sub>2</sub>化学量論を約6.7に調節し、アノードの入口と出口の間での圧力低下が約28.8 psi (0.199 MPa)であることを除いて、上記条件を維持した。

図1の点A及びBの間の部分に示すように、行き詰まりの運転は電池電圧の急勾配の低下を示しており、これはおそらくカソード触媒部位のフラッディングによるものであろう。しかしながら、高速度での水素流(H<sub>2</sub>化学量論=6.7; H<sub>2</sub>圧力低下=28.8 psi (0.199 MPa))の使用によって、点Bで大きな圧力低

下が開始し、次いで点Cを通して維持されるとき、カソードに蓄積された水のアノード出口流中への除去の故に、電池の電圧は回復し安定化する。

図2を参照してアノードでの水の分離を含む燃料電池について空気の化学量論の関数としての電池電圧の2つのプロットが示されている。図2の燃料電池において、Dowの実験用膜がカソードとして奉仕する多孔性ガス拡散電極中に6%のPTFEを配合して用いられた。この燃料電池は、加湿された実質的に純粋な水素と酸素含有空気反応体流を用いて、一定の250 amp s (電極触媒面積平方フィートあたり1000アンペア)で運転された。この実験において、次の一定の運転条件を維持した:電池温度=80℃、30/30 psig (0.21/0.21 MPaゲージ) 空気/H<sub>2</sub> (入口圧力)。プロットEにおいて、H<sub>2</sub>化学量論は、約6.7に維持され、H<sub>2</sub>圧力低下はアノードの入口及び出口の間で28.8 psi (0.199 MPa)であった。プロットEは、これらの条件下において、水がカソードからアノード排出流中へ効率的に除かれるならば、空気の化学量論が約1.0に下がるまで好ましい燃料流が維持される。空気の化学量論

の比較的高いところでの電圧低下は、おそらく、アノード及びカソードの出口流の両方における過剰の水に起因するイオン伝導膜の脱水のためであろう。

図2のプロットFにおいて、 $H_2$ 化学量論を約2.0に調節しアノードの入力及び出口の間の $H_2$ 圧力低下を約4.5 psi (31 kPa)に調節した他は、プロットEの条件を維持した。水がカソードに蓄積され、アノード出口流中に除かれないときは、空気の化学量論が小さくなるに連れて、電池電圧は実質的に小さくなることをプロットFは示している。従って、プロットFによって特徴付けられるようにアノードでの水除去がないときは、低い空気化学量論

での燃料電池の性能はプロットEに示されたものよりも大幅に劣っている。条件Fの下で効率的に燃料電池を作動させるためには、比較的高い空気の化学量論が必要で(約2.0)、望ましくなく高い寄生の負荷をもたらす。

図3～6には、アノードでの水除去を含む燃料電池の発電設備概略流れ図が示されている。図3は、そのような設備10の1つの態様の概略流れ図で、反応体源として、実質的に純粋な水素供給源12及び実質的に純粋な酸素供給源54を用いる。設備10は、3つの主要なサブシステムを含む：(1)燃料サブシステム、(2)酸化剤サブシステム、及び(3)冷却剤サブシステムである。

前記燃料電池サブシステムは、水素供給源12から始まり、これは、図3に示す圧力調製バルブ13を通して新しい水素流14を供給する。新しい水素流14は、脱イオン化され再循環された水素流30と結合され、入口燃料流16を形成し、これは燃料電池の積み重ね40への供給源である。

図3に示すように、燃料電池の積み重ね40は活性区画44及び加湿区画42を含む。活性区画44は、好ましくは複数の膜電極組み立て品(「MEA」)、流体流通領域板、冷却剤流通板、個々の燃料電池の間の電氣的接続、及び水素及び酸素の電極反応によって反応生成物として水を形成することにより、電力を発生する制御回路を含む。各MEAは、好ましくは、個体ポリマーイオン交換膜；前記膜の両側に配置された2枚の多孔質導電性材料；並びに各多孔質導電性シート及び前記膜の間に配置された電気化学的に有効な量の触媒、好ましくは水素／酸素燃料電池の場合には白金、を含む。それに触媒の組み合わせられた1つの多孔

質導電性シートはアノードであり、他のシートはカソードである。MEA構造体の詳細な説明は米国特許出願No. 07/641, 601 (1991年1月15日

出願) 特に図1及び明細書中に伴われたテキストに述べられている。米国特許出願No. 07/641, 601 (1991年1月15日出願) を、ここに引用することによりその全部を記載に含める。

加湿区画42は、好ましくは、入口燃料流及び入口酸化剤流のそれぞれに水を与える複数の膜加湿電池を含む。以下により詳しく論じるように、加湿区画における水の好ましい源は、活性区画44を出た冷却水であり、活性区画44の好ましい冷却水の源は、燃料電池の積み重ね40を出た出口燃料流18である。

燃料電池の積み重ね40に入る入口燃料流16は、加湿区画42にて加湿され、次いで活性区画44中の複数の個々のMEAに送られ、ここで水素は電極触媒反応に参加して水を生成し、電力を可変外部電気負荷46に送る。燃料電池の積み重ね40を出た出口燃料流18は、入口流の加湿からの水に加えて、カソードに蓄積され、濃度勾配によって前記膜を横切ってアノードへ引き移され、活性区画44を循環する水素流中へ水として吸収された生成水を含む。

更に図3に示すように、出口燃料流18は、水分離器70に送られ、この分離器は好ましくは凝縮した水72及びガスを集めるための蒸気空間73からなる。分離器70中で水が分離されて得られたガスは、水素再循環流20を経由して水素再循環圧縮機又はポンプ22へ送られる。圧縮機22を出た圧縮された再循環水素流24は、脱イオンフィルター26及び逆止め弁28を通して送られ、脱イオン化された再循環水素流30を形成する。前述のように、流れ30は新しい水素ガス流14と合流して、燃料電池の積み重ね40に入る入口燃料流16を形成する。

図3中の設備10の酸化剤サブシステムは、酸素供給源54から出発し、この供給源は圧力調製弁55を通して入口酸化剤流56を供給する。燃料電池の積み重ね40に入る入口酸化剤流56は、加

湿区画42で加湿され、次いで活性区画44中の個々のMEAに送られ、ここで酸素は電極触媒反応に参加して水及び可変外部電気負荷46への電力を生成する。図3の設備において、入口酸化剤流56は、実質的に行き詰まりであり、このことは燃料電池の積み重ね40のカソードに供給される酸素は、活性区画44で実質的に完全に消費され、それ故に酸素の化学量論は本質的に1.0である。燃料電池の積み重ね40中のカソードと流体連通関係にある酸素パージ流58は蓄積された不純物を周期的に排除する手段を提供する。酸素パージ流58は、通常は流れを止めているパージバルブ60の作動によって開始される。

図3中の設備10の冷却剤サブシステムは、分離器70の貯蔵器中の水72によって開始される。貯蔵器水流74は、再循環水弁80が開くことによって、再循環水流82に送られる。パージ水バルブ76を開けると、貯蔵器流74からの水の一部が排水流78として送られ、これによって過剰の水は外へ抜き出される。再循環水流82は、水循環ポンプ84を通して圧縮された再循環水流86へ送られる。水流86は、次いで、脱イオンフィルター88を通して水入口流90へ送られる。入口流90中の水は、燃料電池の積み重ね40の活性区画44用の好ましい冷却流体である。この冷却水は一旦活性区画44を通過すると、電池温度に近づき、それ故燃料電池の積み重ね40の加湿区画42用の好ましい水源となる。加湿区画42を通過したのち、水流は出口水流92を経由して熱交換器94に送られ、ここで水から熱が除かれて冷えた水流96になる。冷えた水流96は、次いで、水分離器70に送られ、ここで出口燃料流18から水の凝縮に参加する。

図4は、アノードに水分離を含む燃料電池発電設備110の第2の具体例である。設備110は、反応体源として実質的に純粋な水

素供給源112及び酸素含有空気供給源154を用いる。加湿区画142及び144を含み、可変の外部負荷146に電力を供給する設備110の燃料電池の積み重ね140は、図3の燃料電池の積み重ね40と実質的に同じである。図3の設備10と同様に、設備110は燃料、酸化剤及び冷却剤の各サブシステムを含む。



図4の設備110の燃料サブシステムは、図3の設備10の燃料サブシステムと同じであり、図4の流れ114、116、118、120、124及び130は、図3の設備10の流れ14、16、18、20、24及び30とそれぞれ対応し、同様な機能を有する。同様に、図4の燃料電池の積み重ね140は活性区画144及び加湿区画142を有し、電力を可変の外部負荷146に供給し、図3の燃料電池の積み重ね40と実質的に同じである。同様に、図4の圧力調製弁113、水分離器170、水素再循環圧縮機122、脱イオンフィルター126及び逆止め弁128は、図3中の設備10のバルブ13、分離器70、圧縮機22、脱イオン用フィルター26及び逆止め弁28に、それぞれ対応し同様な機能を有する。

図4の設備110の酸化剤サブシステムは、酸素含有空気供給源154から出発し、この供給源154は、圧縮機155及び圧力調節器157を通して入口酸化剤流156に送られる。入口酸化剤流156は、約1.1～2.0という比較的低い酸素化学量論を用いる燃料電池140に供給される。燃料電池の積み重ね140に入る入口酸化剤流156は、加湿区画142で加湿され、次いで活性区画144中の複数の個々のMEAに送られ、ここで加湿された空気中の酸素は電極触媒反応に参加して、水、及び可変の外部負荷146への電力を生産する。出口酸化剤流158は、燃料電池の積み重ね140中のカソードと流体として連通している。出口酸化剤流158を通る流れはバルブ160の作動によって流れ159を排出す

る。排出流159中の水は、この設備から排出流を放出するに先立って、任意に、分離器170におけるように、ガス成分から分離される。

図4の設備110の冷却サブシステムは、図3の設備10の冷却サブシステムと実質的に同じであり、図4の設備110の流れ174、178、182、186及び190は、図3の設備10の流れ74、78、82、86及び90と、それぞれ対応し、同様な機能を有する。同様に、図4の設備110のバルブ176及び180、水再循環ポンプ184、脱イオンフィルター188並びに熱交換器194は、図3の設備10のバルブ76及び80、ポンプ84、脱イオンフィル

ター88並びに熱交換器94に、それぞれ対応し、同様な機能を有する。

図5は、アノードに水分離を含む燃料電池発電設備210の第3の具体例である。設備210は、反応体源として不純な水素供給源212及び実質的に純粋な酸素供給源254を用いる。加湿区画242及び244を含み、可変の外部負荷246に電力を供給する設備210の燃料電池の積み重ね240は、図3及び4の燃料電池の積み重ね40及び140とそれぞれ実質的に同じである。それぞれ図3及び4の設備10及び110と同様に、設備210は燃料、酸化剤及び冷却剤の各サブシステムを含む。

設備210の酸化剤サブシステムは、図3の設備10のそれと実質的に同じであり、図5の設備210の流れ256及び258は、図3の設備10の流れ56及び58とそれぞれ対応し、図5の設備210の実質的に純粋な酸素供給源254は、図3の設備10の酸素供給源54に対応し、そして図5の設備210のバルブ255及び260は、図3の設備10のバルブ55及び60に対応し、同様な機能を有する。

図5の設備210の冷却サブシステムは、図3の設備10の冷却サブシステムと実質的に同じであり、図5の設備210の流れ274、278、282、286及び290は、図3の設備10の流れ74、78、82、86及び90と、それぞれ対応し、同様な機能を有する。同様に、図5の設備210のバルブ276及び280、水再循環ポンプ284、脱イオンフィルター288並びに熱交換器294は、図3の設備10のバルブ76及び80、ポンプ84、脱イオンフィルター88並びに熱交換器94に、それぞれ対応し、同様な機能を有する。

前記図5の設備210の燃料サブシステムは、不純な水素の供給源212から始まる。この不純な水素は、例えば炭化水素の水素並びに二酸化炭素及び痕跡量の一酸化炭素のような他の副生物への変換から得られるものである。不純な水素供給源212は、図5に示すような圧力調製弁213を通して入口燃料流216を供給する。入口燃料流216は、燃料電池240への入口燃料流216と出口燃料流218の間の比較的大きな圧力低下を用いて燃料電池の積み重ね240に供給される。燃料電池の積み重ね240に入る入口燃料流216は、加湿部24

2で加湿され、次いで活性区画244の複数の個々のMEAに送られ、ここで不純で加湿された流れ中の電極触媒反応に酸化して水及び可変の外部負荷246への電力を生産する。燃料電池の積み重ね240から出る出口燃料流218は、口燃料流216の加湿からの水に加えてカソードに蓄積され濃度勾配により膜を横切ってアノードへ引き寄せられ、活性区画244を循環する水素流中へ水として吸収された生成水を含む。

図5に更に示されているように、出口燃料流218は水分離器270に送られ、この分離器は好ましくは、凝縮した水272を集めるための貯蔵容器及びガスを集めるための蒸気空間273からなる。

。分離器270中に水を除いて得られたガスは、設備210から排出される。

図6は、アノードに水分離を含む燃料電池発電設備310の第4の具体例である。設備310は、反応体源として不純な水素供給源212及び酸素含有空気供給源254を用いる。加湿区画342及び344を含み、可変の外部負荷346に電力を供給する設備310の燃料電池の積み重ね340は、図3、4及び5の燃料電池の積み重ね40、140及び240とそれぞれ実質的に同じである。それぞれ図3、4及び5の設備10、110及び210と同様に、設備310は燃料、酸化剤及び冷却剤の各サブシステムを含む。

図6の設備310の燃料サブシステムは、図5の設備210の燃料サブシステムと実質的に同じであり、図6の設備310の流れ316、318及び320は、図6の設備310の流れ216、218及び220とそれぞれ対応する。図6の設備310の不純な水素源312、圧力調節器313、及び水分離器370は、図5の設備210の不純な水素源212、圧力調節器213、及び水分離器270に対応し、同様な機能を有する。

図6の設備310の酸化剤サブシステムは、図4の設備110の酸化剤サブシステムと実質的に同じであり、図6の設備310の流れ356、358及び359は、図4の設備110の流れ156、158及び159とそれぞれ対応する。同様に、図6の設備310の空気供給354、圧縮機355、圧力調節器357及びバルブ360は、図4の設備110の空気供給154、圧縮機155、圧力

調節器157及びバルブ160に対応し、同様な機能を有する。

図6の設備310の冷却サブシステムは、図3の設備10の冷却サブシステムと実質的に同じであり、図6の設備310の流れ374、378、382、386及び390は、図3の設備10の流れ

74、78、82、86及び90と、それぞれ対応し、同様な機能を有する。同様に、図6の設備310のバルブ376及び380、水再循環ポンプ384、脱イオンフィルター388並びに熱交換器394は、図3の設備10のバルブ76及び80、ポンプ84、脱イオンフィルター88並びに熱交換器94に、それぞれ対応し、同様な機能を有する。

図7を参照して、ここに図3～6にそれぞれ燃料電池の積み重ね40、140、240及び340として参照したタイプの燃料電池の積立の組み立て部品を一般的に分解組み立て図として示す。燃料電池の積み重ね組み立て品410は、一对の末端プレート411、412を有し、これらはそれぞれ都合よく流体末端プレートへ411及び圧縮末端プレート412である。プレート411及び412は積み重ねの組み立て体410の末端部をなす。末端プレート411及び412の間に貫通した連結棒415が伸びている。連結棒415は連結棒ナット445で締めつけられて積み重ね組み立て品410を組み立てられた状態に保持する。

電氣的絶縁プレート414が末端プレート411の内側に配置されている。末端プレート412内にピストン417が配置されている。図7に示すように、積み重ね組み立て体410の活性区画の相対する端部に、バスプレート(bus plate)420、421が配置されており、積み重ね組み立て体410で発生した電流を外部電気負荷(図示せず)に配電する。冷却水ジャケット422、423がバスプレート420、421のすぐ内側に配置されている。

この積み重ね組み立て体410は、一般に424で示された活性区画、及び一般に430で示された加湿区画を含む。前記活性区画424は、バスプレート420、421及び冷却水ジャケット42

2、423に加えて、431で一般に示された複数の同じ組み立て体を含み、各

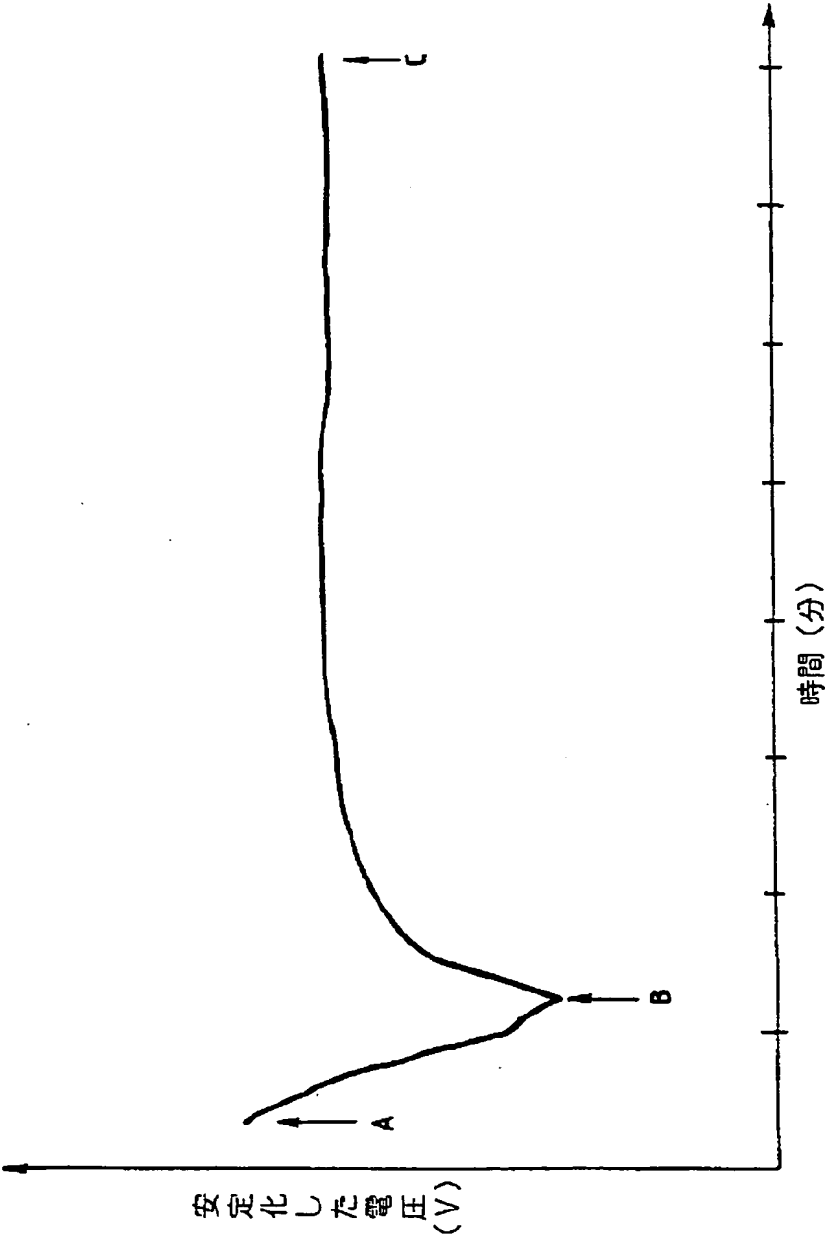
組み立て体は3つの流体流れ領域プレート432、433、434及び2つの膜電極組み立て体(MEA)440からなり、この膜電極組み立て体は流れ領域プレート432、433、434の間に介在する。各組み立て体431において、最も左の流れ領域プレート432は一つの側に実質的に純粋な水素ガスの形をした燃料を輸送し、任意にプレート432の反対側の導管内に冷却流体を輸送する。MEA440はプレート432及び433の間に介在させる。中央の流れプレート433は実質的に純粋な酸素ガス又は酸素含有空気を一の側に、水素を反対側に輸送する。最も右のプレート434は、MEA440に隣接する側に酸化剤を、任意にプレート434の反対側に冷却流体(好ましくは水)を輸送する。この組み立て体431の形状は、各MEA440の反対側に水素及び酸化剤を配置し、望むならば、各MEAに隣接して冷却流体プレートを配置する。この形状は、燃料電池の積み重ね410の活性区画424を通して伸びている。

燃料電池の積み重ね410の加湿区画430は、図7に示された加湿区画430の左側に一般に位置している複数の酸化剤加湿流領域プレート441、及びこの加湿区画430の右側に一般に位置している複数の燃料加湿流領域プレート442を含む。加湿区画430は、それぞれ燃料加湿流領域プレート442及び酸化剤加湿流領域プレート441の間に、複数の燃料加湿膜437及び複数の酸化剤加湿膜436有する。

本発明の特別の要素、具体例及び応用を示し、説明したが、勿論、当業者は変更をすることができ、特に上述の開示内容から変更をすることができるのであるから、本発明はこれらに限定されるものではないことが理解されよう。添付の特許請求の範囲は本発明の精

神及び範囲に属する態様を含むものと考えられる。

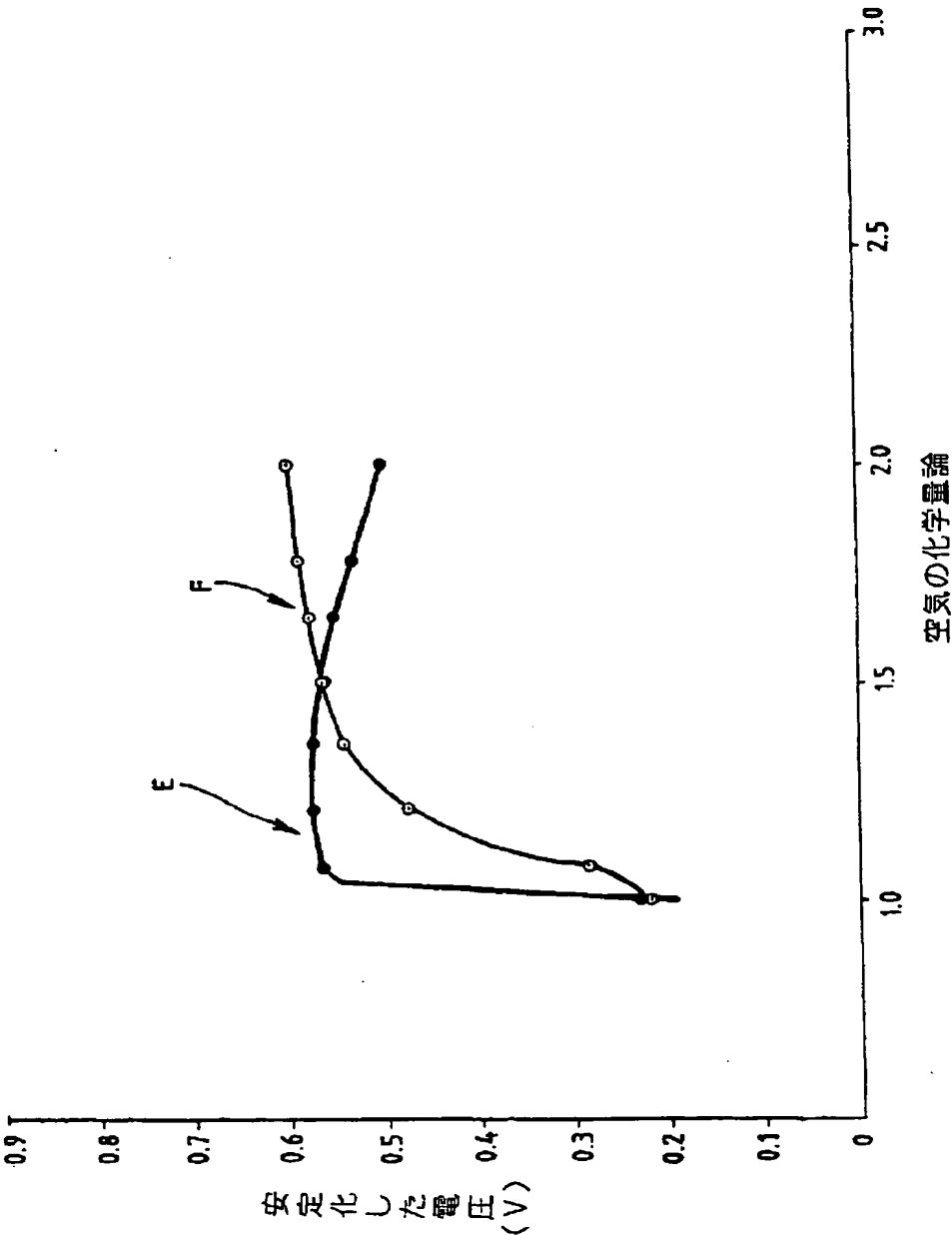
【図 1】  
Fig. 1  
酸素が行き詰まりである燃料電池の作動



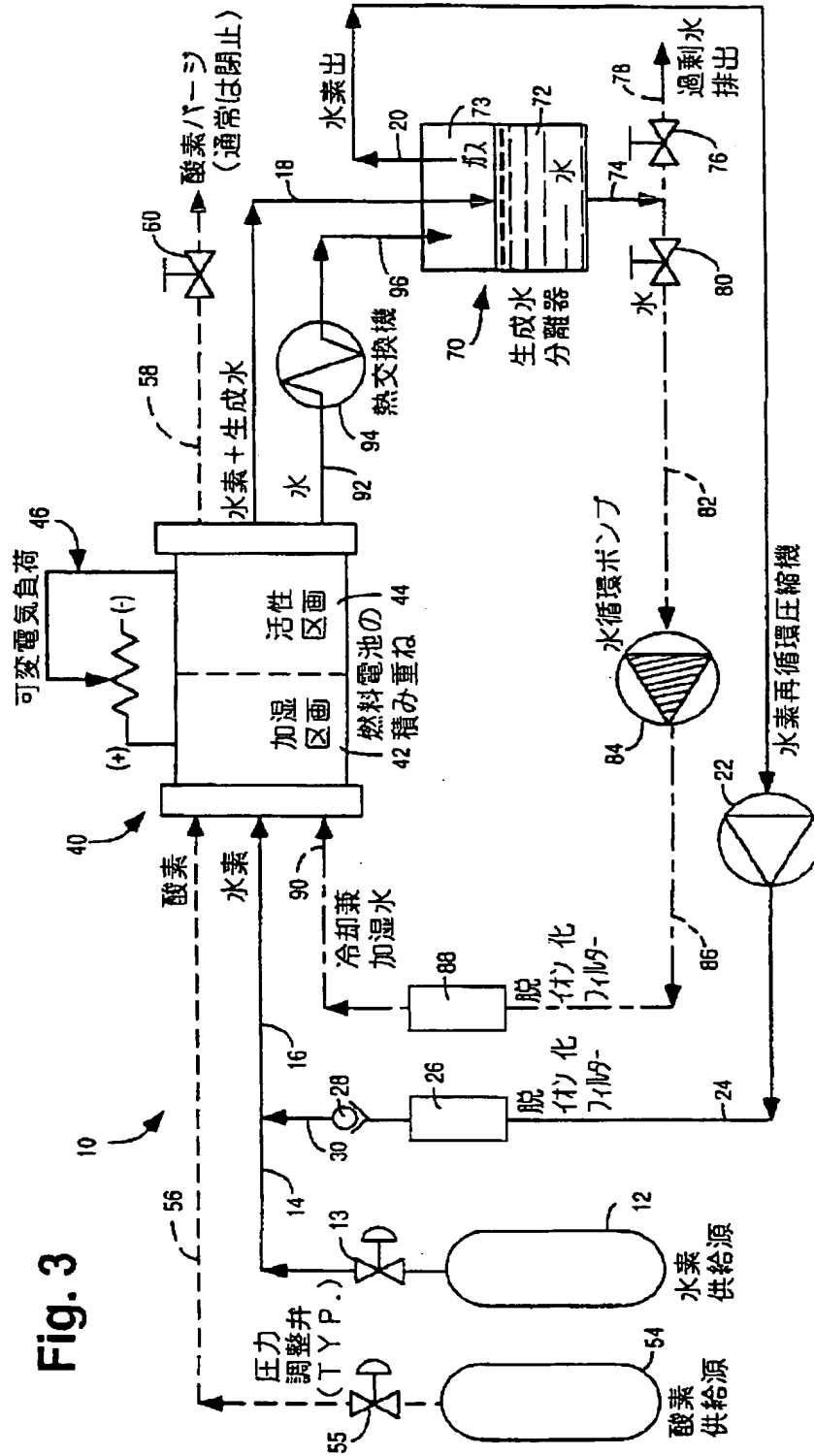
【図2】

Fig. 2

低空気化学量論での燃料電池の作動



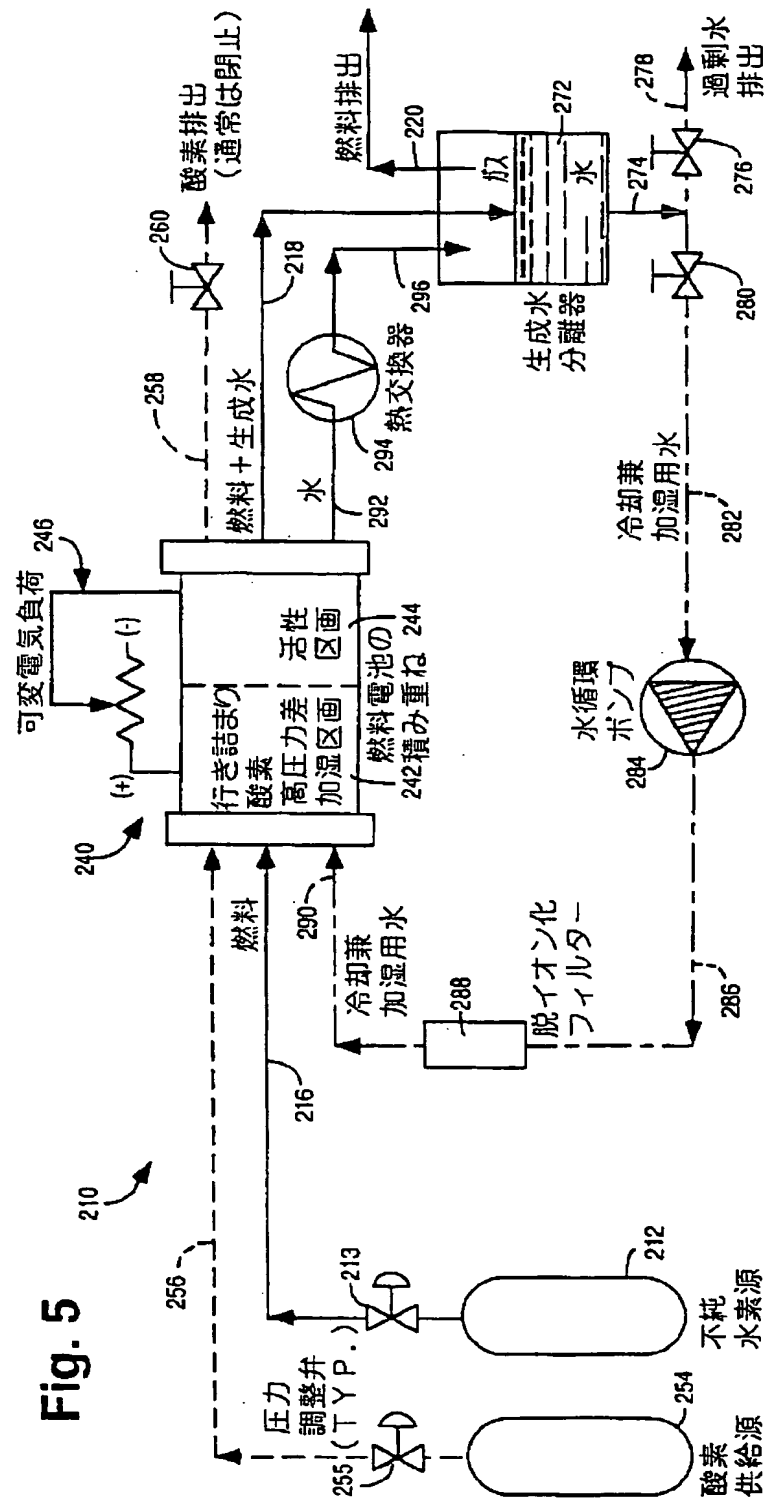
【図3】



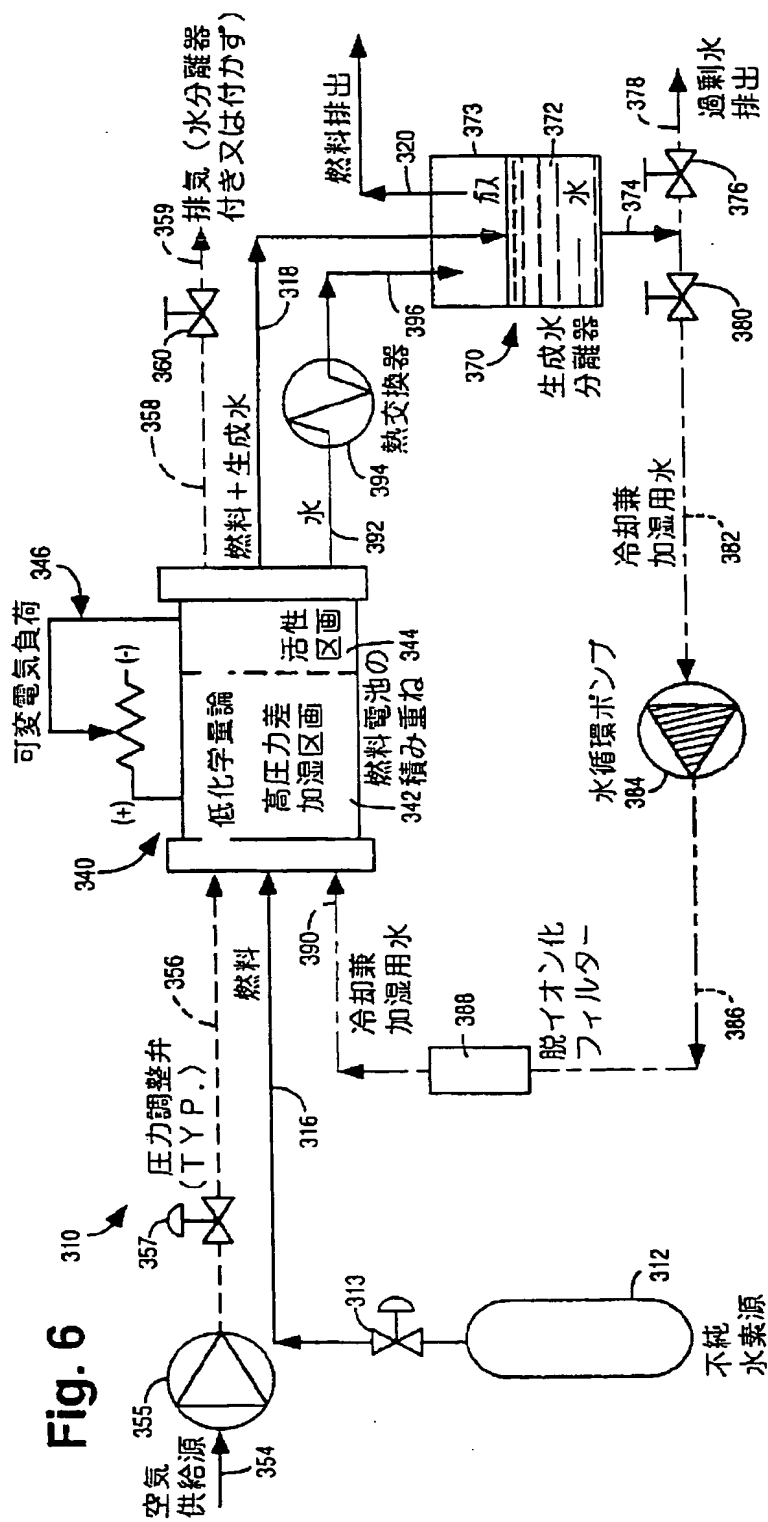




【図5】

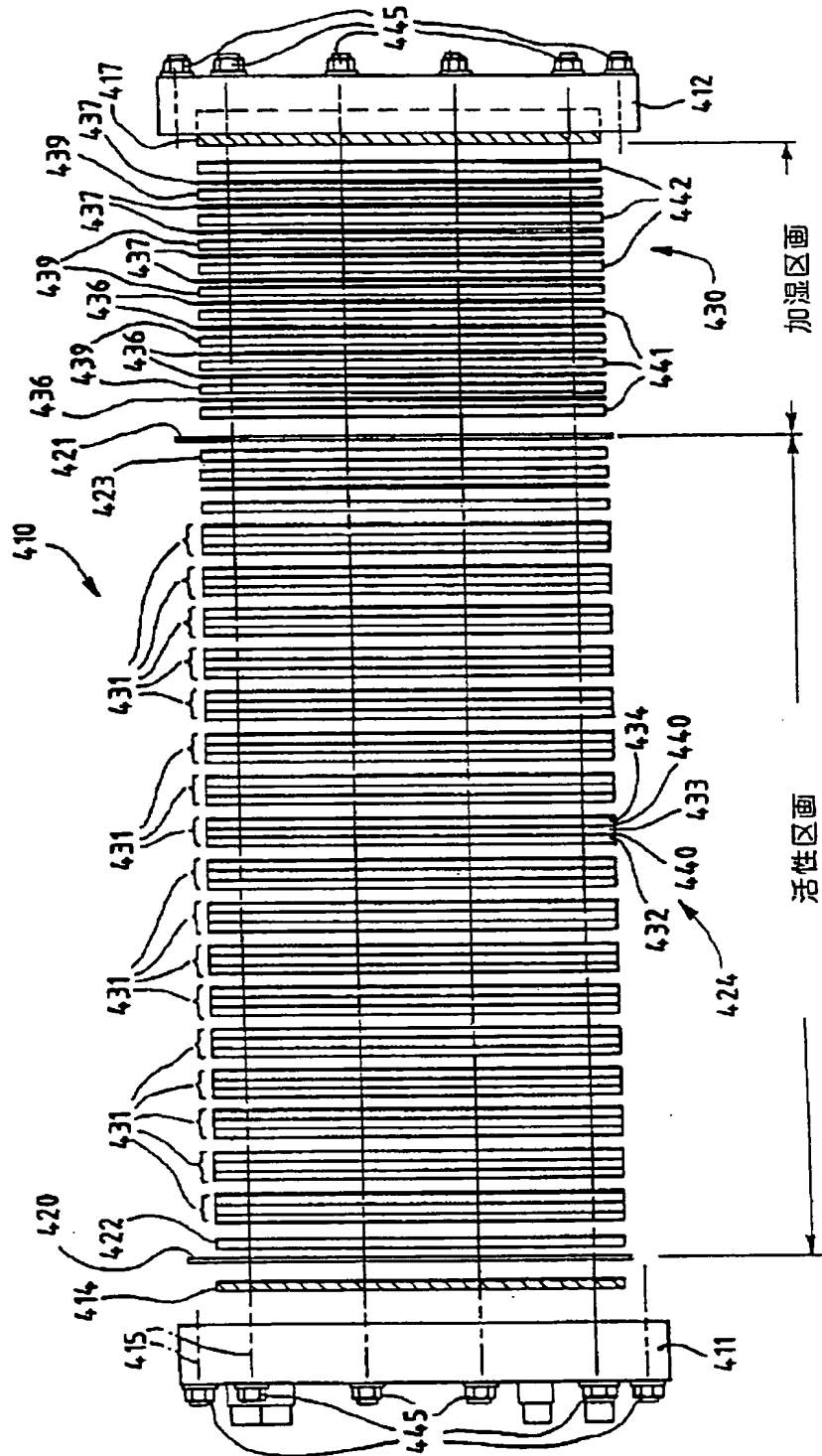


【図 6】



【图7】

Fig. 7



【手続補正書】特許法第184条の7第1項

【提出日】1994年3月1日

【補正内容】

請求の範囲

1. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 次のものを含む少なくとも1つの燃料電池を含む燃料電池の積み重ね

：

(1) 前記入口燃料流を前記アノードの触媒活性部分に送るための入口を有するアノードであって、前記燃料流からカチオンを及び出口燃料流を生成するもの；

(2) 前記入口酸化剤流を前記カソードの触媒活性部分に送ってこの酸化剤流からアニオンを生成するための入口を有するカソード（前記アニオンは前記カチオンと反応して前記カソードで水を生成する）；

(3) 前記アノード及び前記カソードの間に配置されたカチオン交換膜であって、前記アノードから前記カソードへのカチオンの移動を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの；

(4) 前記アノードと前記カソードの間で電流を導通させる電气流路；並びに

(5) 前記出口燃料流中の水蒸気分圧を、その中に含まれる水蒸気の飽和蒸気圧未満に維持する手段；

(D) 前記出口燃料流から水を除いて除湿された燃料流及び分離された水流を作るための水分離器；

ここに、前記カソードに蓄積された水の実質的な部分は前記出口燃料流中に吸収される。

2. 前記入口酸化剤流の化学量論が約2.0未満である請求の範

囲1の設備。

3. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記入口燃料流に再循環される請求の範囲1の設備。

4. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の変換過程からの副生物であり、前記除湿された燃料流がこの設備からガス抜きされる請求の範囲1の設備。

5. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素ガスであり、前記入口酸化剤流の化学量論が約1.0であり、前記酸素ガスが前記カソードで実質的に完全に消費される請求の範囲1の設備。

6. 前記カソードが更に通常は閉じたパージバルブを有し、前記パージバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求の範囲5の設備。

7. 前記入口酸化剤流が酸素含有空気を含み前記カソードが更に出口酸化剤流を生成し、前記酸化剤流が前記装置からガス抜きされる請求の範囲1の設備。

8. 更に前記出口酸化剤流から水を除いて除湿された酸化剤流及び除去された水流を生成するための水分離器を含む請求の範囲7の設備。

9. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 入口冷却水流；

(D) 次のものを含む加湿組み立て品：

(1) 燃料加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口燃料流へ水を与えて加湿された燃料流を生成する手段とを含む少な

くとも1つの燃料加湿区画；

(2) 酸化剤加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口酸化剤流へ水を与えて加湿された酸化剤流を生成する手段とを含む少なくとも1つの酸化剤加湿区画；

(E) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 加湿された燃料流からカチオンを生成するための、加湿された燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 加湿された酸化剤流からアニオンを生成するための、加湿された酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するカチオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記加湿された燃料流を前記加湿された酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電气流路；並びに

(e) 前記出口燃料流中の水蒸気分圧を、その中に含まれる水蒸気の飽和蒸気圧未満に維持する手段；

(2) 入日冷却水流を電気化学的に活性な区画に送ってこれと熱接触させて、前記活性区画内で発生した熱を吸収し出口冷却水流を生成する入口を有する少なくとも1つの冷却剤通路；

(F) 前記出口冷却水流から熱を除いて冷やされた冷却水流を作りだすための熱交換器；

(G) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(H) 前記水分離器からの分離された水流及び前記熱交換器からの冷やされた冷却水流を受け取るための貯蔵器；

ここに、前記入口冷却水流は前記貯蔵器から引き出され、前記カソードに蓄積された水の実質的部分は前記出口燃料流中に吸収される。

10. 前記出口冷却水流が、前記燃料加湿供給源及び前記酸化剤加湿水供給源の内の少なくとも1つに供給される請求の範囲9の設備。

11. 前記冷却水流が、前記燃料加湿供給源及び前記酸化剤加湿水供給源の両方に供給される請求の範囲9の設備。

12. 前記水分離器及び前記貯蔵器が一体であり、前記貯蔵器内に含まれる水が前記出口燃料流からの水の凝縮を促進する請求の範囲9の設備。

13. 前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水蒸気を与える手段が、前記燃料加湿水供給源をうけとるための室、前記入口燃料流を受け取るための室、及び前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水蒸気を輸送して加湿された燃料流を生成するための前記両室の間に介在する水蒸気輸送膜を含む請求の範囲9の設備。

14. 前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水蒸気を与える手段が、前記酸化剤加湿水供給源をうけとるための室、前記入口酸化剤流を受け取るための室、及び前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水蒸気を輸送して加湿された酸化剤流を生成するための前記両室の間に介在する水蒸気輸送膜を含む請求の範囲9の設備。

15. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記入口燃料流に再循環される請求の範囲9の設備。

16. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の変換からの副生物であり、前記除湿された燃料流が前記設備からガス抜きされる請求の範囲9の設備。

17. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素であり、前記酸素ガスが前記カソードで実質的に完全に消費される請求の範囲9の装置。

18. 前記カソードが更に通常は閉じたパージバルブを有し、前記パージバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求の範囲17の設備。

19. 前記入口酸化剤流が酸素含有空気を含み前記カソードが更に出口酸化剤流を生成し、前記酸化剤流が前記装置からガス抜きされる請求の範囲9の設備。

20. 更に前記出口酸化剤流から水を除いて除湿された酸化剤流及び除去された水流を生成するための水分離器を含み、前記貯蔵器か前記除去された水流を前記水分離器から受け取る請求の範囲9の設備。

21. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；



(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 次のものを含む加湿組み立て品：

(1) 燃料加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入口燃料流へ水を与えて加湿された燃料流を生成する手段とを含む少なくとも1つの燃料加湿区画；

(2) 酸化剤加湿水供給源と、この燃料加湿水供給源から入

口酸化剤流へ水を与えて加湿された酸化剤流を生成する手段とを含む少なくとも1つの酸化剤加湿区画；

(D) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 加湿された燃料流からカチオンを生成するための、加湿された燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 加湿された酸化剤流からアニオンを生成するための、加湿された酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するカチオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記加湿された燃料流を前記加湿された酸化剤流から隔離するもの；

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電気流路；  
並びに

(e) 前記出口燃料流中の水蒸気分圧を、その中に含まれる水蒸気の飽和蒸気圧未満に維持する手段；

(E) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(F) 前記水分離器からの分離された水流を受け取るための貯蔵器；

ここに、燃料加湿水供給源の少なくとも1つ及び酸化剤加湿水供給源の内の少

なくとも1つは前記貯蔵器から取り出され、前記カソードに蓄積された水の実質的部分は前記出口燃料流中に吸収される

。

22. 前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水蒸気を与える手段が、前記燃料加湿水供給源をうけとるための室、前記入口燃料流を受け取るための室、及び前記燃料加湿水供給源から前記入口燃料流へ水蒸気を輸送して加湿された燃料流を生成するための前記両室の間に介在する水蒸気輸送膜を含む請求の範囲21の設備。

23. 前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水蒸気を与える手段が、前記酸化剤加湿水供給源をうけとるための室、前記入口酸化剤流を受け取るための室、及び前記酸化剤加湿水供給源から前記入口酸化剤流へ水蒸気を輸送して加湿された酸化剤流を生成するための前記両室の間に介在する水蒸気輸送膜を含む請求の範囲21の設備。

24. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記入口燃料流に再循環される請求の範囲21の設備。

25. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の変換からの副生物であり、前記除湿された燃料流が前記設備からガス抜きされる請求の範囲21の設備。

26. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素であり、前記酸素ガスが前記カソードで実質的に完全に消費される請求の範囲21の装置。

27. 前記カソードが更に通常は閉じたパージバルブを有し、前記パージバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求の範囲26の設備。

28. 前記入口酸化剤流が酸素含有空気を含み前記カソードが更に出口酸化剤流を生成し、前記酸化剤流が前記装置からガス抜きさ

れる請求の範囲21の設備。

29. 次のものを含む発電設備：

(A) 水素含有入口燃料流；

(B) 酸素含有入口燃料流；

(C) 入口冷却水流；

(E) 次のものを含む燃料電池の積み重ね：

(1) 少なくとも1つの燃料電池を含む電気化学的に活性な区画であって、前記燃料電池は次のものを含む：

(a) 入口燃料流からカチオンを生成するための、入口燃料流をアノードの触媒活性な部分に送る入口と、出口燃料流とを有するアノード；

(b) 入口酸化剤流からアニオンを生成するための、入口酸化剤流をカソードの触媒活性な部分に送る入口を有するアノード（このアニオンは前記カチオンと反応してこのカソードで水を形成する）；

(c) 前記アノード及びカソードの間に介在するイオン交換膜であって、アノードからのカチオンのカソードへの移行を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの；並びに

(d) 前記アノードと前記カソードとの間で電流を導通する電气流路；並びに

(e) 前記出口燃料流中の水蒸気分圧を、その中に含まれる水蒸気の飽和蒸気圧未満に維持する手段；

(2) 入口冷却水流を電気化学的に活性な区画に送りこれと熱接触させて、前記活性区画内で発生した熱を吸収し出口冷却水流を生成する入口を有する少なくとも1つの冷却材通路；

(F) 前記出口冷却水流から熱を除いて冷やされた冷却水流を作

りだすための熱交換器；

(G) 出口燃料流から水を除き、除湿された燃料及び分離された水流を生成するための水分離器；並びに

(H) 前記水分離器からの分離された水流及び前記熱交換器からの冷やされた冷却水流を受け取るための貯蔵器；

ここに、前記入口冷却水流は前記貯蔵器から引き出され、前記カソードに蓄積された水の実質的部分は前記出口燃料流中に吸収される。

30. 前記水分離器及び前記貯蔵器が一体であり、前記貯蔵器に含まれる水が前記出口燃料流からの水の凝縮を促進する請求の範囲29の設備。

31. 前記アノードが、更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出す出口を含み、ここに、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記燃料電池の中で圧力低下を与えるための手段を含む、請求の範囲1の設備。

32. 前記圧力低下付与手段が前記アノードの入口の少なくとも1つの付形されたオリフィスを含む請求の範囲31の設備。

33. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送る長く伸びた流体流通路を含む請求の範囲31の設備。

34. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送る変化する断面積を有する流体流通路を含む請求の範囲31の設備。

35. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出すための出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の温度を制御して前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を含む請求の範囲1の設備。

36. 前記水蒸気分圧維持手段が、前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の圧力を制御して、前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を更に含む請求の範囲35の設備。

37. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出す出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記燃料電池内に圧力低下を付与する手段を含む請求の範囲9の設備。

38. 前記圧力低下付与手段が、少なくとも1つの付形されたオリフィスを前記アノード入口に有する請求の範囲37の設備。

39. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送るための長く伸びた流体流路を含む請求の範囲37の設備。

40. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送る流体流路を含む変化する断面積を有する流体流路を含む請求の範囲37の設備。

4 1. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出すための出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の温度を制御して前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を含む請求の範囲 9 の設備。

4 2. 前記水蒸気分圧維持手段が、前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の圧力を制御して、前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を更に含む請求の範囲 4 1 の設備。

4 3. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出す出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及

び前記アノード出口の間の前記燃料電池内に圧力低下を付与する手段を含む請求の範囲 2 1 の設備。

4 4. 前記圧力低下付与手段が、少なくとも 1 つの付形されたオリフィスを前記アノード入口に有する請求の範囲 4 3 の設備。

4 5. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送るための長く伸びた流体流路を含む請求の範囲 4 3 の設備。

4 6. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送る流体流路を含む変化する断面積を有する流体流路を含む請求の範囲 4 3 の設備。

4 7. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出すための出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の温度を制御して前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を含む請求の範囲 2 1 の設備。

4 8. 前記水蒸気分圧維持手段が、前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の圧力を制御して、前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を更に含む請求の範囲 4 7 の設備。

4 9. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出す出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記燃料電池内に圧力低下を付与する手段を含む請求の範囲 2 9 の設備。

5 0. 前記圧力低下付与手段が、少なくとも 1 つの付形されたオリフィスを前

記アノード入口に有する請求の範囲49の設備。

51. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送るための長く伸びた流体流路を含む請求の範囲49の設備。

52. 前記圧力低下付与手段が、前記入口燃料流を前記アノード内に送る流体流路を含む変化する断面積を有する流体流路を含む請求の範囲49の設備。

53. 前記アノードが更に前記出口燃料流を前記アノードから送り出すための出口を含み、前記水蒸気分圧維持手段が前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の温度を制御して前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を含む請求の範囲29の設備。

54. 前記水蒸気分圧維持手段が、前記アノード入口及び前記アノード出口の間の前記入口燃料流の圧力を制御して、前記温度をその中に含まれる水蒸気の凝縮温度より高く維持する手段を更に含む請求の範囲53の設備。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US93/10333

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>																				
IPC(5) : H01M 8/00, 8/04, 8/10, 8/12 US CL : 429/13, 17, 26, 30, 33 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC																				
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>																				
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) U.S. : 429/13, 17, 26, 30, 33																				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched																				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)																				
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>																				
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.																		
Y	US, A, 4,973,530 (VANDERBORGH ET AL.) 27 NOVEMBER 1990, COLS. 2-5.	1-30																		
Y	FRANK J. HENDEL, WATER RECOVERY FROM FUEL CELLS AND LUNAR MINERALS, 56 INDUS. AND ENG. CHEM. 29, 29-30 (1964).	1-30																		
Y	THE BALLARD FUEL CELL - AN OVERVIEW, BALLARD POWER SYSTEMS, INC., MAY 1990, FIGURE 6-5 AND SECTION 6.4.	1-30																		
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.																				
<table border="0"> <tr> <td>* Special categories of cited documents:</td> <td>T</td> <td>later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principles or theory underlying the invention</td> </tr> <tr> <td>*A* document defining the general state of the art which is not considered to be part of particular relevance</td> <td>X</td> <td>document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</td> </tr> <tr> <td>*E* earlier document published on or after the international filing date</td> <td>Y</td> <td>document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</td> </tr> <tr> <td>*L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</td> <td>g</td> <td>document member of the same patent family</td> </tr> <tr> <td>*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</td> <td></td> <td></td> </tr> <tr> <td>*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</td> <td></td> <td></td> </tr> </table>			* Special categories of cited documents:	T	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principles or theory underlying the invention	*A* document defining the general state of the art which is not considered to be part of particular relevance	X	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone	*E* earlier document published on or after the international filing date	Y	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art	*L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	g	document member of the same patent family	*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means			*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
* Special categories of cited documents:	T	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principles or theory underlying the invention																		
*A* document defining the general state of the art which is not considered to be part of particular relevance	X	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone																		
*E* earlier document published on or after the international filing date	Y	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art																		
*L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	g	document member of the same patent family																		
*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means																				
*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed																				
Date of the actual completion of the international search 10 December 1993		Date of mailing of the international search report DEC 28 1993																		
Name and mailing address of the ISA/US Commissioner of Patents and Trademarks Box PCT Washington, D.C. 20231		Authorized Officer ANTHONY MCFARLANE																		
Facsimile No. NOT APPLICABLE		Telephone No. (703) 308-3795																		

---

 フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, M C, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AT, AU, BB, BG, BR, CA, CH, CZ, DE, DK, ES, FI, GB, HU, JP, KP, KR, KZ, LK, LU, MG, MN, MW, NL, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SK, UA

(71)出願人 ボス, ヘンリー エイチ.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ7ティー 1エイチ1, ウェスト バ  
 ンクーバー, ダッチェス アベニュー 1163

(71)出願人 ワトキンス, デビッド エス.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ3ジェイ 2エヌ3, コキトラム, フ  
 ォスター アベニュー 1581

(71)出願人 ブラター, キース ビー.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ6エヌ 1エヌ2, バンクーバー, ブ  
 レスコット ストリート 7049

(72)発明者 ウィルキンソン, デビッド ビー.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ7ケー 1ダブリュ4, ノース バン  
 クーバー, コールマン ストリート 1391

(72)発明者 ボス, ヘンリー エイチ.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ7ティー 1エイチ1, ウェスト バ  
 ンクーバー, ダッチェス アベニュー 1163

(72)発明者 ワトキンス, デビッド エス.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ3ジェイ 2エヌ3, コキトラム, フ  
 ォスター アベニュー 1581

(72)発明者 ブラター, キース ビー.

カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
 ブイ6エヌ 1エヌ2, バンクーバー, ブ  
 レスコット ストリート 7049



【公報種別】特許法第17条第1項及び特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
 【部門区分】第7部門第1区分  
 【発行日】平成10年(1998)8月18日

【公表番号】特表平8-507405  
 【公表日】平成8年(1996)8月6日  
 【年通号数】  
 【出願番号】特願平6-511303  
 【国際特許分類第6版】

H01M 8/04  
 8/10

【F1】

H01M 8/04 K  
 8/10

手続補正書

平成10年2月 日

(II)請求の範囲を創紙のように補正する。

7. 添付書類の日数

請求の範囲

1通

特許庁長官 荒井 勇 光 殿

1. 事件の表示

平成6年特許願第511303号

2. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

名称 パラード パワー システムズ インコーポレイティド(外4名)

3. 代理人

住所 〒105-8423 東京都港区虎ノ門三丁目5番1号 虎ノ門37森ビル

青和特許法律事務所 電話 03-5470-1900

氏名 井上(ナガノ) 裕 敬

4. 補正対象書類名

明細書及び請求の範囲

5. 補正対象項目名

(I) 明 細 書

(II) 請求の範囲

6. 補正の内容

(1) (I) 明細書の発明の名称「アノードでの水分を含む固体ポリマー燃料電池設備」を「アノードでの水分を含む固体ポリマー燃料電池設備」に訂正する。

(2) 明細書第8頁第4行、第10頁第2行、第11頁下から2行目、第13頁第8行の「酸素含有入口」の次の「燃料」を「酸化剤」に訂正する。



請求の範囲

1. 次のものを含む発電装置:

(A) 入口燃料流;

(B) 酸素含有入口酸化剤流;

(C) 次のものを含む少なくとも1つの燃料電池を含む燃料電池の組み立て

(1) 前記入口燃料流をアノードの触媒活性部分に送るための入口を有する当該アノードであって、前記燃料流からカチオンを及び出口燃料流を生成するもの;

(2) 前記入口酸化剤流をカソードの触媒活性部分に送る当該カソードであって、前記カチオンと前記入口酸化剤流との反応を促進して前記カソードで水を形成するもの;

(3) 前記アノード及び前記カソードの間に配置されたカチオン交換膜であって、前記アノードから前記カソードへのカチオンの移動を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの;

(4) 前記アノードと前記カソードの間で電流を導通させる電気流路;並びに

(5) 前記出口燃料流中の水蒸気の一部を、その中に含まれる水蒸気の飽和蒸気圧未満に維持し、前記カソードで形成された水の電質的な部分が前記出口燃料流中に吸収されるようにした手段;

ここに、前記入口酸化剤流中の前記酸素は、前記カソードで実質的に完全に消費される。

2. 更に次のものを含む請求項1の装置:

(D) 前記出口燃料流から水を除いて除湿された燃料流及び分離された水湿を作るための水分露器。

3. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記アノード入口に再循環される請求項2の装置。

4. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の交換過剰からの副産物を含む、前記除湿された燃料流がこの設備からガス抜きされる請求項2の装置。

9. 前記設備が更に次のものを含む、請求項7の方法:

(D) 前記出口燃料流から水を除いて除湿された燃料流及び分離された水湿を作るための水分露器。

10. 前記入口燃料流が実質的に純粋な水素ガスからなり、前記除湿された燃料流が前記アノード入口に再循環される請求項9の方法。

11. 前記入口燃料流が水素ガス及び炭化水素の交換過剰からの副産物を含む、前記除湿された燃料流がこの設備からガス抜きされる請求項9の方法。

12. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素ガスである請求項7の方法。

13. 前記流れ閉鎖手段が更に通常は閉じたバジバルブを有し、前記バジバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求項12の方法。

5. 前記入口酸化剤流が実質的に純粋な酸素ガスである請求項1の装置。

6. 前記カソードが更に通常は閉じたバジバルブを有し、前記バジバルブは周期的に開いて前記入口酸化剤流を前記設備からガス抜きし、これによって蓄積した不純物を前記カソードから排出する請求項5の装置。

7. 次のものを含む発電装置の操作方法であって:

(A) 入口燃料流;

(B) 酸素含有入口酸化剤流であって、前記入口酸化剤流を調整するためにこの酸化剤流と結び付けられたもの;

(C) 次のものを含む少なくとも1つの燃料電池を含む燃料電池の組み立て

(1) 前記入口燃料流をアノードの触媒活性部分に送るための入口を有する当該アノードであって、前記燃料流からカチオンを及び出口燃料流を生成するもの;

(2) 前記入口酸化剤流をカソードの触媒活性部分に送る当該カソードであって、前記カチオンと前記入口酸化剤流との反応を促進して前記カソードで水を形成するもの;

(3) 前記アノード及び前記カソードの間に配置されたカチオン交換膜であって、前記アノードから前記カソードへのカチオンの移動を促進し、前記入口燃料流を前記入口酸化剤流から隔離するもの;

(4) 前記アノードと前記カソードの間で電流を導通させる電気流路;並びに

(5) 前記出口燃料流中の水蒸気の一部を、その中に含まれる水蒸気の飽和蒸気圧未満に維持する手段;

前記入口酸化剤流は、この酸化剤流中の前記酸素が前記カソードで実質的に完全に消費され、このカソードで形成された水の電質的な部分が前記出口燃料流中に吸収されるように調節されることを特徴とする前記操作方法。

8. 前記流れ閉鎖手段が圧力調節バルブを有し、前記方法が前記入口流中の前記酸素が前記カソードで実質的に完全に消費されるように前記バルブを調節することを含む、請求項7の方法。

**\* NOTICES \***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

**[Claim(s)]**

1. Generation-of-Electrical-Energy Facility Containing the Following: (A) Hydrogen Content Inlet-Port Fuel Style;  
(B) Oxygen content inlet-port fuel style;  
(C) pile of the fuel cell containing at least one fuel cell containing the following: (1) — the anode which has an inlet port for sending said inlet-port fuel style to the catalytic activity part of said anode — it is — said fuel style to a cation — and thing; which generates an outlet fuel style  
(2) Cathode which has an inlet port for sending said inlet-port oxidizer style to the catalytic activity part of said cathode, and generating an anion from this oxidizer style (said anion reacts with said cation and generates water with said cathode);  
(3) What is the ion exchange membrane arranged between said anode and said cathode, promotes the migration of a cation to said cathode from said anode, and isolates said inlet-port fuel style from said inlet-port oxidizer style; in a list (4) Electric passage which makes it flow through a current between said anodes and said cathodes;  
(D) Water separator for making the fuel style dehumidified except for water, and the separated stream from said outlet fuel style;  
The substantial part of the water accumulated in said cathode here is absorbed in said outlet fuel style.
2. Facility of claim 1 whose stoichiometry of said inlet-port oxidizer style is less than about 2.0.
3. Facility of claim 1 with which recycling of said dehumidified fuel style is carried out in the style of [ said ] inlet-port fuel by said inlet-port fuel style consisting of pure hydrogen gas substantially.
4. Facility of claim 1 with which said inlet-port fuel styles are hydrogen gas and by-product from conversion process of hydrocarbon, and gas drainage of said dehumidified fuel style is carried out from this facility.
5. Facility of claim 1 by which said inlet-port oxidizer style is pure oxygen gas substantially, stoichiometry of said inlet-port oxidizer style is about 1.0, and said oxygen gas is substantially consumed completely with said cathode.
6. It has the purge valve which said cathode further usually closed, and open said purge valve periodically, it vents said inlet-port oxidizer style from said facility, and the claim 5 which discharges the impurity accumulated by this from said cathode furnishes it.
7. Facility of claim 1 with which said cathode generates [ said inlet-port oxidizer style ] outlet oxidizer style further including oxygen content air, and gas drainage of said oxidizer style is carried out from said equipment.
8. Facility of claim 7 containing water separator for generating oxidizer style furthermore dehumidified except for water from said outlet oxidizer style, and removed stream.
9. Generation-of-Electrical-Energy Facility Containing the Following: (A) Hydrogen Content Inlet-Port Fuel Style;  
(B) Oxygen content inlet-port fuel style;  
(C) Inlet-port circulating water flow;  
(D) Humidification assembly article containing the following: At least one fuel humidification

partition including (1) fuel humidification water source of supply and a means to generate the fuel style which gave water to the inlet-port fuel style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(2) At least one oxidizer humidification partition including an oxidizer humidification water source of supply and a means to generate the oxidizer style which gave water to the inlet-port oxidizer style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(E) pile of the fuel cell containing the following: (1) — at least one fuel cell is included — it is an activity partition electrochemically and said fuel cell contains the following: Anode; which has the inlet port which sends the fuel style by which it was humidified for generating a cation from the fuel style by which (a) humidification was carried out to a part [ \*\*\*\*\* / an anode ], and an outlet fuel style

(b) Anode which has the inlet port which sends the oxidizer style by which it was humidified for generating an anion from the humidified oxidizer style to a part [ \*\*\*\*\* / a cathode ] (this anion reacts with said cation and forms water with this cathode);

(c) What is the ion exchange membrane which intervenes between said anode and a cathode, promotes the shift to the cathode of the cation from an anode, and isolates said humidified fuel style from said humidified oxidizer style; in a list (d) Electric passage which flows through a current between said anodes and said cathodes;

(2) At least one cooling agent path which has the inlet port which sends an inlet-port circulating water flow to an activity partition electrochemically, is made to carry out heat contact with this, absorbs the heat generated in said activity partition, and generates an outlet circulating water flow;

(F) Heat exchanger for making the circulating water flow cooled except for heat from said outlet circulating water flow;

(G) The water separator for generating the fuel dehumidified except for water from the outlet fuel style, and the separated stream; in a list (H) Reservoir for receiving the circulating water flow cooled from the stream separated from said water separator, and said heat exchanger; Said inlet-port circulating water flow is pulled out from said reservoir here.

10. The facility of a claim 9 with which said outlet circulating water flow is supplied to at least one of said fuel humidification source of supply and said oxidizer humidification water sources of supply.

11. The facility of a claim 10 with which said circulating water flow is supplied to both said fuel humidification source of supply and said oxidizer humidification water source of supply.

12. The facility of a claim 9 with which the water which said water separator and said reservoir are one, and is contained in said reservoir promotes condensation of the water from said outlet fuel style.

13. A facility of the claim 9 containing the water transport film which intervenes among said both \*\* for generating the fuel style by which a means to give water conveyed water to said inlet-port fuel style, and was humidified to said inlet-port fuel style from \*\* for receiving \*\* for receiving said fuel humidification water source of supply, and said inlet-port fuel style, and said fuel humidification water source of supply from said fuel humidification water source of supply.

14. A facility of the claim 9 containing the water transport film which intervenes among said both \*\* for generating the oxidizer style by which a means to give water conveyed water to said inlet-port oxidizer style, and was humidified to said inlet-port oxidizer style from \*\* for receiving \*\* for receiving said oxidizer humidification water source of supply, and said inlet-port oxidizer style, and said oxidizer humidification water source of supply from said oxidizer humidification water source of supply.

15. The facility of a claim 9 with which recycling of said dehumidified fuel style is carried out in the style of [ said ] an inlet-port fuel by said inlet-port fuel style consisting of pure hydrogen gas substantially.

16. The facility of a claim 9 with which said inlet-port fuel styles are hydrogen gas and a by-product from conversion of a hydrocarbon, and gas drainage of said dehumidified fuel style is carried out from said facility.

17. Equipment of the claim 9 by which said inlet-port oxidizer style is pure oxygen substantially,

and said oxygen gas is substantially consumed completely with said cathode.

18. It has the purge valve which said cathode further usually closed, and open said purge valve periodically, it vents said inlet-port oxidizer style from said facility, and the claim 17 which discharges the impurity accumulated by this from said cathode furnishes it.

19. The facility of a claim 9 with which said cathode generates [ said inlet-port oxidizer style ] an outlet oxidizer style further including oxygen content air, and gas drainage of said oxidizer style is carried out from said equipment.

20. The facility of a claim 9 with which said reservoir furthermore receives said removed stream from said water separator including the water separator for generating the oxidizer style dehumidified except for water from said outlet oxidizer style, and the removed stream.

21. Generation-of-Electrical-Energy Facility Containing the Following: (A) Hydrogen Content Inlet-Port Fuel Style;

(B) Oxygen content inlet-port fuel style;

(C) Humidification assembly article containing the following: At least one fuel humidification partition including (1) fuel humidification water source of supply and a means to generate the fuel style which gave water to the inlet-port fuel style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(2) At least one oxidizer humidification partition including an oxidizer humidification water source of supply and a means to generate the oxidizer style which gave water to the inlet-port oxidizer style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(D) pile of the fuel cell containing the following: (1) — at least one fuel cell is included — it is an activity partition electrochemically and said fuel cell contains the following : Anode; which has the inlet port which sends the fuel style by which it was humidified for generating a cation from the fuel style by which (a) humidification was carried out to a part [ \*\*\*\*\* / an anode ], and an outlet fuel style

(b) Anode which has the inlet port which sends the oxidizer style by which it was humidified for generating an anion from the humidified oxidizer style to a part [ \*\*\*\*\* / a cathode ] (this anion reacts with said cation and forms water with this cathode);

(c) What is the ion exchange membrane which intervenes between said anode and a cathode, promotes the shift to the cathode of the cation from an anode, and isolates said humidified fuel style from said humidified oxidizer style; in a list (d) Electric passage which flows through a current between said anodes and said cathodes;

(E) The water separator for generating the fuel dehumidified except for water from the outlet fuel style, and the separated stream; in a list (F) Reservoir for receiving the stream separated from said water separator;

At least one of the fuel humidification water sources of supply and at least 1 of oxidizer humidification water sources of supply are taken out from said reservoir here.

22. A facility of the claim 21 containing the water transport film which intervenes among said both \*\* for generating the fuel style by which a means to give water conveyed water to said inlet-port fuel style, and was humidified to said inlet-port fuel style from \*\* for receiving \*\* for receiving said fuel humidification water source of supply, and said inlet-port fuel style, and said fuel humidification water source of supply from said fuel humidification water source of supply.

23. A facility of the claim 21 containing the water transport film which intervenes among said both \*\* for generating the oxidizer style by which a means to give water conveyed water to said inlet-port oxidizer style, and was humidified to said inlet-port oxidizer style from \*\* for receiving \*\* for receiving said oxidizer humidification water source of supply, and said inlet-port oxidizer style, and said oxidizer humidification water source of supply from said oxidizer humidification water source of supply.

24. The facility of a claim 21 with which recycling of said dehumidified fuel style is carried out in the style of [ said ] an inlet-port fuel by said inlet-port fuel style consisting of pure hydrogen gas substantially.

25. The facility of a claim 21 with which said inlet-port fuel styles are hydrogen gas and a by-product from conversion of a hydrocarbon, and gas drainage of said dehumidified fuel style is carried out from said facility.

26. Equipment of the claim 21 by which said inlet-port oxidizer style is pure oxygen substantially, and said oxygen gas is substantially consumed completely with said cathode.

27. It has the purge valve which said cathode further usually closed, and open said purge valve periodically, it vents said inlet-port oxidizer style from said facility, and the claim 26 which discharges the impurity accumulated by this from said cathode furnishes it.

28. The facility of a claim 21 with which said cathode generates [ said inlet-port oxidizer style ] an outlet oxidizer style further including oxygen content air, and gas drainage of said oxidizer style is carried out from said equipment.

29. Generation-of-Electrical-Energy Facility Containing the Following: (A) Hydrogen Content Inlet-Port Fuel Style;

(B) Oxygen content inlet-port fuel style;

(C) Inlet-port circulating water flow;

(E) pile of the fuel cell containing the following: (1) — at least one fuel cell is included — it is an activity partition electrochemically and said fuel cell contains the following : Anode; which has the inlet port which sends the inlet-port fuel style for generating a cation from (a) inlet-port fuel style to a part [ \*\*\*\*\* / an anode ], and an outlet fuel style

(b) Anode which has the inlet port which sends the inlet-port oxidizer style for generating an anion from an inlet-port oxidizer style to a part [ \*\*\*\*\* / a cathode ] (this anion reacts with said cation and forms water with this cathode);

(c) What is the ion exchange membrane which intervenes between said anode and a cathode, promotes the shift to the cathode of the cation from an anode, and isolates said inlet-port fuel style from said inlet-port oxidizer style; in a list (d) Electric passage which flows through a current between said anodes and said cathodes;

(2) At least one coolant path which has the inlet port which sends an inlet-port circulating water flow to an activity partition electrochemically, is made to carry out heat contact with this, absorbs the heat generated in said activity partition, and generates an outlet circulating water flow;

(F) Heat exchanger for making the circulating water flow cooled except for heat from said outlet circulating water flow;

(G) The water separator for generating the fuel dehumidified except for water from the outlet fuel style, and the separated stream; in a list (H) Reservoir for receiving the circulating water flow cooled from the stream separated from said water separator, and said heat exchanger; Said inlet-port circulating water flow is pulled out from said reservoir here.

30. The facility of a claim 29 with which the water which said water separator and said reservoir are one, and is contained in said reservoir promotes condensation of the water from said outlet fuel style.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

Field of individual polymer fuel cell facility invention including water separation with an anode  
This invention relates to an electrochemical fuel cell. In more detail, substantially, this invention is a pure individual polymer reach and using/or impure fuel, and oxidizer style fuel cell facility, and is related in the outlet fuel style of an anode at the thing except the water of the substantial part accumulated in a cathode.

Background of invention An electrochemical fuel cell changes a fuel and an oxidizer into the electrical and electric equipment and a resultant. In the electrochemical fuel cell are using hydrogen as a fuel and using oxygen as an oxidizer, a resultant is water. The membrane electrode collection object ("MEA") with which it generally comes to arrange an individual polymer electrolyte or ion exchange membrane between a porous conductive sheet material and two electrodes typically formed from carbon fiber paper is used for such a fuel cell. This MEA contains in each film / electrode interface the catalyst bed which carried out the form of the platinum of the shape of typically detailed powder, in order to trigger the electrochemical reaction of a wish. Said electrode is connected electrically and the path which makes the outside load between two electrodes flow through an electron is offered.

In an anode, this fuel penetrates a porous electrode material, reacts by the catalyst bed, a cation is formed, and this cation shifts to a cathode through this film. In a cathode, an oxygen content gas supply object reacts by the catalyst bed, and forms an anion. The anion formed with the cathode reacts with said cation, and forms a resultant.

In the electrochemical fuel cell are using hydrogen as a fuel and using oxygen content air (or substantially pure oxygen) as an oxidizer, the catalytic reaction in an anode generates a hydrogen cation (proton) from a fuel feed stock. Said ion exchange membrane promotes the migration of a hydrogen ion to a cathode from an anode. In addition to flowing through a hydrogen ion, this film isolates a hydrogen content fuel style from an oxygen content oxidizer style. In a cathode, oxygen reacts in a catalyst bed and forms an anion. The anion formed with a cathode reacts with the hydrogen ion which has crossed the film, and forms the water of a liquid as a resultant.

In order to cause ion transport, hydration of perfluoro-sulfone ion exchange membrane, for example, the thing currently sold to the basis of a trade name Nafion from DuPont, is carried out, or it must be saturated with the water molecule. When a cation is conveyed through such perfluoro-sulfone film, generally it is admitted that the water molecule which is meeting to these cations is also conveyed. This phenomenon is sometimes called "a water pumping (water pumping)", and brings about the flow of the water of the net from a membranous anode side to a cathode side. Therefore, the film in which a water pumping phenomenon is shown will dry an anode side, if the water conveyed with a hydrogen ion (proton) is not supplied. Typically, such supply is offered by humidifying a hydrogen content fuel style, before introducing a fuel style into a cell. In order similarly to prevent the film drying by the cathode side, generally an oxygen content oxidizer style is humidified to introduce an oxidizer style into a fuel cell. So, the fuel cell using these cation exchange membrane needs to remove the water accumulated by both the water which crosses the film and is conveyed according to a water pumping phenomenon, and a

hydrogen ion and the generation water formed with a cathode from the reaction of oxygen from a cathode (oxidizer) side.

Are recording of the water in a cathode has a problem by several reasons. If the water of a liquid is near the catalyst bed, approach to the region of a catalyst will decrease, consequently the power of a fuel cell will decrease [ 1st ]. This phenomenon is sometimes called "flooding (flooding)." Are recording of the liquid water in a cathode prevents it from water penetrating a cathode and going to a catalyst, and brings [ 2nd ] about loss of the power of a fuel cell too. If liquid water is superfluously accumulated with a cathode, a physical change will be produced on the neighboring film and local swelling and expansion of the film will be caused [ 3rd ]. Contrary to this, dehydration causes membranous desiccation and contraction and produces the mechanical stress which corresponds in the interface of an electrode catalyst.

Generally the conventional water removal method takes away the water accumulated in the cathode to the oxidizer style which comes out of a cathode from a cathode catalyst bed. One of the conventional water removal methods is vomiting namely, sending out the accumulated water from a cathode using the capillary tube put into the cathode. Other one of the conventional water removal methods is using a network into a cathode and taking water away from a catalyst bed. The approach of further others of the conventional water removal method puts in the constituent aqueous matter ("PTFE"; trade name Teflon), for example, polytetrafluoroethylene, into a cathode sheet material, and is last thing [ exerting coercion like ] from a cathode about the accumulated water. These conventional water removal methods are disadvantageous at the following reason. : (1) They need to drive out water of the film / electrode catalyst bed to the porous structure of a cathode.;

(2) Existence of the water of a liquid restricts the flow of the oxidizer passing through the clearance between porous gas diffusion electrodes.;

(3) When liquid water exists all over an oxidizer circulation way, there is a possibility of restricting the flow of the oxidant gas in this passage.

In the facility including water removal with an anode, water is pulled apart from a cathode side through the film, and it enters into an anode outlet style, and on the other hand, water is formed by the interface of the film / electrode catalyst, and oxidant gas diffuses it in an activity catalytic site freely.

United States patent application No.07/641,601 are XUS on (January 15, 1991). It was indicated that the perfluorosulfone ion exchange membrane for an experiment new type currently sold to the bottom of the trade name which becomes 13204.10 from Dow does not show so much the water pumping phenomenon connected with transportation of the hydrogen ion which lets the film pass. It seems that therefore, the film for an experiment of Dow does not have the transport capacity of a big hydrogen ion like the film of a Nafion mold. Reduction of the water pumping in this film for an experiment of Dow reduces are recording with the cathode of the conveyed water, and only produces removal of all the water usually produced with a cathode in an anode side. As shown in previous patent application, removal of the water by the side of an anode is also performed also for the Nafion type film.

As discussed upwards, generally the hydrogen ion conductivity which lets ion exchange membrane pass needs existence of a water molecule. Before a fuel and oxidant gas so introduce them into a cell, they are humidified, and they maintain the water saturation of the film in MEA.

Usually, a fuel and oxidant gas are humidified, when each gas is passed in one side of the water-exchange film and they pass a sink and deionized water to the opposite side of this film.

Deionized water is desirable in order that the film may prevent being polluted with the ion which is not desirable. In the humidification equipment of such the film base, water shifts to a fuel and oxidant gas through the film. Although Nafion is a suitable and convenient humidification film ingredient in such an application, the available water-exchange film is also commercially [ others ] suitable for it.

The method of humidifying other non-film bases can also be used. For example, the water which exposed said gas to direct water all over the evaporation chamber, and evaporated in this gas can be made to absorb.

It is the operating temperature and the pressure of a fuel cell, or, generally it is desirable to



humidify a fuel and oxidant gas by the temperature and the pressure possible nearest to this. The capacity for gas like air to absorb water changes sharply with change of temperature and a pressure. Humidification of the air (oxidizer) style in temperature sharply lower than fuel cell operating temperature will dehydrate the film after all. Therefore, it is desirable to concentrate a humidification function on the activity part [ fuel cell ] of a pile, and to make a fuel and an oxidizer style into the conditions of the almost same temperature as the activity partition of said pile and a pressure. the circulating water flow from the activity partition which is the operating temperature of said cell in such concentrated equipment, or is the temperature near this — humidification — service water — it is used as a style. Similarly, generally a condition is attached to a fuel and an oxidizer style to each delivery to an activity partition via a manifold or a header at cell temperature, and they are sent to a humidification partition after that. It is also advantageous to use the generation water which in addition to accumulating the circulating water flow of an activity partition with the humidification water of a humidification partition a fuel cell generation stream is accumulated with a refrigerant style, and a fuel cell is under pile by this, and is generated electrochemically for adjusting the temperature of this pile. About this, if generation water is used as a refrigerant, the need of supplying the cooling fluid from another outside is avoidable. It is because the water which generated it by said cell is a cooling fluid suitable in itself. At the time of starting which can raise an activity partition to operating temperature using a comparatively warm generation stream, it is advantageous to use generation water as a cooling fluid.

In the outlet fuel style of an anode, if design and actuation conditions of a fuel cell that the accumulated water is made to remove are used, some advantages will be acquired. Especially the water removal by the side of an anode makes actuation of hydrogen / oxygen fuel cell change a cathode, i.e., oxygen, side into a "deadlock (dead-ended)" condition. That is, an oxygen content oxidizer style is supplied to a cathode, is consumed completely substantially, and does not generate an outlet style from a cathode in essence. Therefore, deadlock actuation abolishes the need for an oxygen recirculation pump. The recirculation pump of oxygen is expensive and difficult to maintain on account of corrosive action of the damp oxygen content style like the humidified oxidizer style through which it circulates through hydrogen / oxygen fuel cell. Since the cost of this whole facility is lowered and the leakage of oxygen and the possibility of combustion are reduced, removing an oxygen recirculation pump from a fuel cell facility improves the dependability of a fuel cell. Removing an oxygen recirculation pump reduces the load (hotel (hotel)) of parasitism of this fuel cell facility, and it makes high the rate of the power from the fuel cell facility which is useful to sending out to an external load instead of being consumed by actuation of an oxygen recirculation pump.

An advantage will be brought to a facility, if the water accumulated from the anode side of this fuel cell is removed, and when using air as an oxidizer. If water is removed from an anode so that it may explain to a detail by the following, a fuel cell can be efficiently operated by the comparatively low air rate of flow. Since a gas flow rate is characterized, the vocabulary "a stoichiometry (stoichiometry)" is used. A stoichiometry says the ratio of the amount of the reagent consumed with the \*\*\*\* fuel cell of the reagent supplied to the fuel cell so that it may use here. It says that H two-generations study stoichiometry 1.0 has the amount of the hydrogen consumed with the fuel cell equal to the amount of the hydrogen supplied to the fuel cell. In the fuel cell which operates with the oxygen of a deadlock, the stoichiometry of oxygen is 1.0, and the amount of the oxygen supplied to the fuel cell is consumed completely substantially. Similarly, H two-generations study stoichiometry 2.0 means that the amount of the hydrogen supplied to the fuel cell is twice the amount of the hydrogen consumed with the fuel cell. The stoichiometry of a low oxygen style which becomes possible by removal of the water in an anode reduces the load of parasitism required to compress an oxygen style. Power required to compress an oxidizer style during the facility which operates by the thin oxidizer style, for example, oxygen content air, is the representation of the load of substantial and big parasitism. Since the load of parasitism is proportional to an oxidizer stoichiometry directly, the reduction in an oxidizer stoichiometry reduces the load of parasitism, and improves the power of the net which can be pulled out from this facility to external electric load by this.

The efforts for identifying the approach for operating the electrochemical fuel cell using hydrogen impure as a fuel recently have been paid. Since it is expensive to manufacture and store pure hydrogen gas, generally the fuel cell facility which operates using pure hydrogen substantially is disadvantageous. In addition, it is an automobile, and it is pure and it is desirable to use liquid fuel for the hydrogen in use of the electrochemical fuel cell to transportation by which bottling was carried out.

Profits are brought to a facility when hydrogen also with impure water removal with an anode is used as fuel sources. The accumulated water is removed in a discharge fuel style by a proper design and proper actuation conditions of a fuel cell, and actuation by the oxygen or the low stoichiometry of a deadlock is enabled, maintaining the advantage of the above-mentioned facility in such a fuel cell facility by this.

Therefore, one purpose of this invention is offering the individual polymer fuel cell facility which avoids recycling of an oxidizer style by this except for the water accumulated in the cathode in the outlet fuel style of an anode.

Other purposes of this invention are the individual polymer fuel cell facilities including removal of the water by the side of an anode, and are offering substantially a pure fuel style, for example, the hydrogen which carried out bottling, and an impure fuel style, for example, the thing which can operate using what is produced from the inversion to the hydrogen of a hydrocarbon.

The purpose of further others of this invention is the individual polymer fuel cell facility including removal of the water by the side of an anode, and is offering what can operate using a pure oxidizer style, for example, the oxygen which carried out bottling, and an impure oxidizer style, for example, oxygen content air, substantially.

Epitome of invention The above and other purposes are attained by the individual polymer fuel cell generation-of-electrical-energy facility by which the water accumulated in the cathode is removed in the outlet fuel style of an anode.

This facility contains the following. : (A) hydrogen content inlet-port fuel style;

(B) Oxygen content inlet-port fuel style;

(C) Pile of the fuel cell containing at least one fuel cell containing the following: Said anode which has the inlet port and outlet fuel style for sending (1) inlet-port fuel style to the catalytic activity part of an anode, and generating a cation from this fuel style;

(2) Cathode which has an inlet port for sending an inlet-port oxidizer style to the catalytic activity part of a cathode, and generating an anion from this oxidizer style (said anion reacts with said cation and generates water with a cathode);

(3) What is the ion exchange membrane arranged between said anode and a cathode, promotes the migration of a cation to a cathode from an anode, and isolates an inlet-port fuel style from an inlet-port oxidizer style; in a list Electric passage which makes it flow through a current between (4) anodes and a cathode; in a list Water separator for making the fuel style dehumidified except for water, and the separated stream from (D) outlet fuel style.

The substantial part of the water accumulated in the cathode is absorbed in an outlet fuel style. the thing which are used here and which the relative humidity (molar quantity of the water per mol of this same gas that is comparatively alike and receives when gas is saturated with the temperature and the pressure which were given with water) of a fluid style decreased [ "it was dehumidified" and ] is meant. Although the dehumidified flow still has water in flow if it puts in another way, there are few relative amounts of the existing water than what is contained in the flow before being dehumidified.

In a desirable facility, there is less stoichiometry of an inlet-port oxidizer style than about 2.0.

Recycling of the fuel style by which the inlet-port fuel style was dehumidified in the facility which contains pure hydrogen gas substantially is carried out preferably to an inlet-port fuel style. Probably, it will be desirable to discharge the impurity from an accumulated anode like the nitrogen which purged some of recycling hydrogen, and sometimes crossed and diffused the film from a cathode by this.

When an inlet-port fuel style is the facility which are hydrogen gas and a by-product from a hydrocarbon conversion process, the dehumidified fuel style carries out gas drainage from this facility preferably, and discharges from an anode the impurity accumulated by this, for example, a

carbon dioxide. In the facility whose inlet-port oxidizer style is pure oxygen substantially, the stoichiometry of an inlet-port oxidizer style is about 1.0 preferably, therefore oxygen gas is substantially consumed completely with the cathode. In such a desirable facility, a cathode has the purge valve further usually closed preferably, and this vents an inlet-port oxidizer style periodically from this equipment, and discharges from a cathode the impurity accumulated by this. When a cathode generates [ an inlet-port oxidizer style ] an outlet oxidizer style further including oxygen content air, gas drainage of this outlet oxidizer style is preferably carried out from this facility.

In the facility including water removal with an anode, some of water with which some of water accumulated in the cathode was accumulated in the cathode at coincidence although the cathode outlet style was also removed is removed by the anode outlet style. In such an example, a desirable facility generates the oxidizer style dehumidified including the water separator for removing water in the water from an outlet oxidizer style, and the removed stream further. In other modes, the water which the water accumulated in the cathode was removed in the anode outlet style, and was removed such is used as both a cooling agent and reagent humidification service water resources. Such a facility contains the following. : (A) hydrogen content inlet-port fuel style;

(B) Oxygen content inlet-port fuel style;

(C) Inlet-port circulating water flow;

(D) Humidification assembly article containing the following: At least one fuel humidification partition including (1) fuel humidification water source of supply and a means to generate the fuel style which gave water to the inlet-port fuel style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(2) At least one oxidizer humidification partition including an oxidizer humidification water source of supply and a means to generate the oxidizer style which gave water to the inlet-port oxidizer style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(E) pile of the fuel cell containing the following: (1) — at least one fuel cell is included — it is an activity partition electrochemically and said fuel cell contains the following : Anode; which has the inlet port which sends the fuel style by which it was humidified for generating a cation from the fuel style by which (a) humidification was carried out to a part [ \*\*\*\*\* / an anode ], and an outlet fuel style

(b) Anode which has the inlet port which sends the oxidizer style by which it was humidified for generating an anion from the humidified oxidizer style to a part [ \*\*\*\*\* / a cathode ] (this anion reacts with said cation and forms water with this cathode);

(c) What is the ion exchange membrane which intervenes between said anode and a cathode, promotes the shift to the cathode of the cation from an anode, and isolates said humidified fuel style from said humidified oxidizer style; in a list (d) Electric passage which flows through a current between said anodes and said cathodes;

(2) At least one cooling agent path which has the inlet port which sends an inlet-port circulating water flow to an activity partition electrochemically, is made to carry out heat contact with this, absorbs the heat generated in said activity partition, and generates an outlet circulating water flow;

(F) Heat exchanger for making the circulating water flow cooled except for heat from said outlet circulating water flow;

(G) The water separator for generating the fuel dehumidified except for water from the outlet fuel style, and the separated stream; in a list (H) Reservoir for receiving the circulating water flow cooled from the stream separated from said water separator, and said heat exchanger. Said inlet-port circulating water flow is pulled out from said reservoir.

In a desirable facility, said outlet circulating water flow is supplied to at least one of a fuel humidification water source of supply and oxidizer humidification water sources of supply. Said coolant style is most preferably supplied to both a fuel humidification water source of supply and an oxidizer humidification water source of supply.

In a desirable facility, said water separator and reservoir are one, and the water contained in a reservoir promotes condensation of the water from an outlet fuel style.

A desirable means to give water in the style of inlet-port reagin from the humidification water source of supply of each reagin contains the water transport film which has been arranged between \*\* which receives a reagin humidification water source of supply, \*\* which receives said inlet-port reagin style, and said both \*\* and which conveys water in the style of inlet-port reagin from the humidification water source of supply of reagin, and generates the humidified reagin style.

Furthermore, in other modes, the water which the water accumulated in the cathode was removed in the anode outlet style, and was removed such is used as a humidification source.

Such a facility contains the following. : (A) hydrogen content inlet-port fuel style;

(B) Oxygen content inlet-port fuel style;

(C) Humidification assembly article containing the following: At least one fuel humidification partition including (1) fuel humidification water source of supply and a means to generate the fuel style which gave water to the inlet-port fuel style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(2) At least one oxidizer humidification partition including an oxidizer humidification water source of supply and a means to generate the oxidizer style which gave water to the inlet-port oxidizer style, and was humidified from this fuel humidification water source of supply to it;

(D) pile of the fuel cell containing the following: (1) — at least one fuel cell is included — it is an activity partition electrochemically and said fuel cell contains the following : Anode; which has the inlet port which sends the fuel style by which it was humidified for generating a cation from the fuel style by which (a) humidification was carried out to a part [ \*\*\*\*\* / an anode ], and an outlet fuel style

(b) Anode which has the inlet port which sends the oxidizer style by which it was humidified for generating an anion from the humidified oxidizer style to a part [ \*\*\*\*\* / a cathode ] (this anion reacts with said cation and forms water with this cathode);

(c) What is the ion exchange membrane which intervenes between said anode and a cathode, promotes the shift to the cathode of the cation from an anode, and isolates said humidified fuel style from said humidified oxidizer style; in a list (d) Electric passage which flows through a current between said anodes and said cathodes;

(E) The water separator for generating the fuel dehumidified except for water from the outlet fuel style, and the separated stream; in a list (F) Reservoir for receiving the stream separated from said water separator.

At least one of the fuel humidification water sources of supply and at least 1 of oxidizer humidification water sources of supply are taken out from said reservoir.

Furthermore, in other modes, the water which the water accumulated in the cathode was removed in the anode outlet style, and was removed such is used as a source of cooling water.

Such a facility contains the following. : (A) hydrogen content inlet-port fuel style;

(B) Oxygen content inlet-port fuel style;

(C) Inlet-port circulating water flow;

(E) pile of the fuel cell containing the following: (1) — at least one fuel cell is included — it is an activity partition electrochemically and said fuel cell contains the following : Anode; which has the inlet port which sends the inlet-port fuel style for generating a cation from (a) inlet-port fuel style to a part [ \*\*\*\*\* / an anode ], and an outlet fuel style

(b) Anode which has the inlet port which sends the inlet-port oxidizer style for generating an anion from an inlet-port oxidizer style to a part [ \*\*\*\*\* / a cathode ] (this anion reacts with said cation and forms water with this cathode);

(c) What is the ion exchange membrane which intervenes between said anode and a cathode, promotes the shift to the cathode of the cation from an anode, and isolates said inlet-port fuel style from said inlet-port oxidizer style; in a list (d) Electric passage which flows through a current between said anodes and said cathodes;

(2) At least one coolant path which has the inlet port which sends an inlet-port circulating water flow to an activity partition electrochemically, is made to carry out heat contact with this, absorbs the heat generated in said activity partition, and generates an outlet circulating water flow;

(F) Heat exchanger for making the circulating water flow cooled except for heat from said outlet circulating water flow;

(G) The water separator for generating the fuel dehumidified except for water from the outlet fuel style, and the separated stream; in a list (H) Reservoir for receiving the circulating water flow cooled from the stream separated from said water separator, and said heat exchanger.

Said inlet-port circulating water flow is pulled out from said reservoir.

easy explanation of a drawing a cathode output flow [ in / drawing 1 is the plot of the cell voltage as a function of the time amount about a fuel cell which used the film for an experiment of Dow, and / the conventional fuel cell ] (output stream) — \*\* — the effect to the cell voltage of a halt to break and flowing (flow) is shown.

Drawing 2 operates under two different H two-generations study stoichiometry and a pressure drop, therefore shows two plots of the cell voltage as a function of the stoichiometry of the air about the fuel cell which operates at two different rates of water removal with an anode.

Drawing 3 is the outline flowchart of the fuel cell generation-of-electrical-energy facility which uses pure oxygen substantially as pure hydrogen and an oxidizer style as a fuel style including water removal with an anode.

Drawing 4 is the outline flowchart of the fuel cell generation-of-electrical-energy facility which uses oxygen content air as pure hydrogen and an oxidizer style substantially as a fuel style including water removal with an anode.

Drawing 5 is the outline flowchart of a fuel cell generation-of-electrical-energy facility using pure oxygen as hydrogen impure as a fuel style, and an oxidizer style including water removal with an anode substantially.

Drawing 6 is the outline flowchart of a fuel cell generation-of-electrical-energy facility using oxygen content air as hydrogen impure as a fuel style, and an oxidizer style including water removal with an anode.

Drawing 7 is the decomposition assembly side elevation [ fuel cell / which was roughly shown in drawing 3 -6 / individual polymer ] of a pile.

desirable voice — detailed explanation [ like ] the \*\* which does not follow probably the plot of the cell voltage as a function of the time amount about a fuel cell which used the film for an experiment of Dow on drawing 1 with removal of anode water on the contrary — a cathode output flow (output stream) — \*\* — the effect to the cell voltage of a halt to break and flowing (flow) is shown. In the fuel cell of drawing 1, the film for an experiment of Dow used the thing which made the porous gas diffusion electrode which works as a cathode contain 6% of PTFE. It is operated by the real target which humidified using pure oxygen and a hydrogen reagin style by fixed 250amps(es) (1000A per square foot of electrode catalyst area). :cell temperature =80 degree C, 30/30psig(0.21 / 0.21MPa gage) O2/H2 (inlet pressure), H two-generations study stoichiometry which oxygen became a deadlock and maintained the following fixed service conditions in the part (between Points A and B) of the beginning of an experiment = they are about 2.0 and H2 pressure-drop =3.2psi (22kPa) (between the inlet port of said anode, and an outlet).

In the 2nd part of this experiment, H two-generations study stoichiometry (between Points B and C) was adjusted to about 6.7, and the above-mentioned conditions were maintained except for the pressure drops between the inlet port of an anode and an outlet being about 28.8 psi(s) (0.199MPa).

As shown in the part between the points A and B of drawing 1, operation of a deadlock shows the fall of the steep slope of cell voltage, and, probably this will be based on the flooding of a cathode catalytic site. However, the hydrogen style in high speed (H two-generations study stoichiometry =6.7;)

When a big pressure drop begins at Point B and it is subsequently maintained through Point C by use of H2 pressure-drop =28.8psi (0.199MPa), it recovers and the electrical potential difference of removal into the anode outlet style of the water accumulated in the cathode, therefore a cell is stable.

Two plots of the cell voltage as a function of the stoichiometry of air are shown about the fuel cell which includes separation of the water in an anode with reference to drawing 2. In the fuel

cell of drawing 2 , into the porous gas diffusion electrode which serves as a cathode, the film for an experiment of Dow blended 6% of PTFE, and was used. This fuel cell was operated by the humidified real target using pure hydrogen and an oxygen content air reagent style by fixed 250amps(es) (1000A per electrode catalyst area square foot). :cell temperature which maintained the following fixed service condition in this experiment = 80 degrees C, 30 / 30psig (0.21 / 0.21MPa gage) air / H<sub>2</sub> (inlet pressure). In Plot E, H two-generations study stoichiometry was maintained by about 6.7, and H<sub>2</sub> pressure drops were 28.8psi(s) (0.199MPa) between the inlet port of an anode, and the outlet. If water is efficiently removed from a cathode into anode outflow under these conditions, as for Plot E, a desirable fuel style will be maintained until the stoichiometry of air falls in about 1.0. The sag in the comparatively high place of the stoichiometry of air will be for dehydration of the ionic conduction film resulting from the superfluous water in both outlet styles of an anode and a cathode.

In the plot F of drawing 2 , adjusted H two-generations study stoichiometry to about 2.0, and H<sub>2</sub> pressure drop between the input of an anode and an outlet was adjusted to about 4.5 psi(s) (31kPa), and also the conditions of Plot E were maintained. When water is accumulated in a cathode and removed in an anode outlet style, Plot F shows that the stoichiometry of air takes for becoming small and cell voltage becomes small substantially. Therefore, when there is no water removal with an anode so that it may characterize by Plot F, the engine performance of the fuel cell in a low air stoichiometry is sharply inferior to what was shown in Plot E. In order to operate a fuel cell efficiently under Conditions F, the stoichiometry of comparatively high air is required (about 2.0), and the load of high parasitism is brought about desirably.

The generation-of-electrical-energy facility outline flowchart of a fuel cell including water removal with an anode is shown in drawing 3 -6. Drawing 3 is the outline flowchart of one mode of such facility 10, and uses the pure oxygen supply 54 for the pure hydrogen source of supply 12 and a real target substantially as a source of reagent. Facilities 10 are : (1) fuel subsystem containing three main subsystems, (2) oxidizing-agent subsystem, and (3) cooling-agent subsystem.

Said fuel cell subsystem begins from the hydrogen source of supply 12, and this supplies the new hydrogen style 14 through the pressure preparation bulb 13 shown in drawing 3 . It is combined with the hydrogen style 30 by which recycling was deionized and carried out, the new hydrogen style 14 forms the inlet-port fuel style 16, and this is a source of supply to the pile 40 of a fuel cell.

As shown in drawing 3 , the pile 40 of a fuel cell includes the activity partition 44 and the humidification partition 42. The activity partition 44 includes the control circuit which generates power by forming water as a resultant according to the electrode reaction of the electrical installation between two or more desirable membrane electrode assembly articles ("MEA"), a fluid circulation field plate, a cooling agent circulation plate, and each fuel cell, hydrogen, and oxygen. Each MEA is individual polymer ion exchange membrane preferably;

it has been arranged between each porosity conductive liner sheet and said film at the porosity conductivity ingredient; list of two sheets arranged at the both sides of said film — electrochemical — an effective quantity of a catalyst — in the case of hydrogen / oxygen fuel cell, platinum is included preferably. One porosity conductive liner sheet with which the catalyst was combined with it is an anode, and other sheets are cathodes. detailed explanation of the MEA structure — United States patent application No.07 / 641,601 (January 15, 1991 application) — it is stated to the text followed on especially drawing 1 and a detail in the letter. The all are included in a publication by quoting United States patent application No.07 / 641,601 (January 15, 1991 application) here.

The humidification partition 42 contains preferably two or more film humidification cells which give each of an inlet-port fuel style and an inlet-port oxidizer style water. As the following discusses in detail, the desirable source of the water in a humidification partition is cooling water which came out of the activity partition 44, and the source of the desirable cooling water of the activity partition 44 is the outlet fuel style 18 which came out of the pile 40 of a fuel cell. The inlet-port fuel style 16 included in the pile 40 of a fuel cell is humidified in the humidification partition 42, subsequently is sent to two or more MEA(s) of each under activity partition 44, and

hydrogen participates in electrode catalytic reaction, and generates water, and it sends power to the adjustable external electric load 46 here. In addition to the water from humidification of an inlet-port style, the outlet fuel style 18 which came out of the pile 40 of a fuel cell is accumulated in a cathode, it crosses said film according to a concentration gradient, is lengthened and moved to an anode, and contains the generation water absorbed as water into the hydrogen style which circulates through the activity partition 44.

Furthermore, as shown in drawing 3, the outlet fuel style 18 is sent to a water separator 70, and this eliminator consists of steamy space 73 for collecting the water 72 and gas which were condensed preferably.

The gas which water was separated and was obtained in the eliminator 70 is sent to a hydrogen recycling compressor or a pump 22 via the hydrogen recycling style 20. The compressed recycling hydrogen style 24 which came out of the compressor 22 is sent through the deionization filter 26 and a check valve 28, and forms the deionized recycling hydrogen style 30. As mentioned above, flow 30 joins the new hydrogen gas stream 14, and forms the inlet-port fuel style 16 included in the pile 40 of a fuel cell.

The oxidizing agent subsystem of the facility 10 in drawing 3 leaves an oxygen supply 54, and this source of supply supplies the inlet-port oxidizing agent style 56 through the pressure preparation valve 55. The inlet-port oxidizer style 56 included in the pile 40 of a fuel cell is humidified in the humidification partition 42, and, subsequently it is sent to each MEA under activity partition 44, and oxygen participates in electrode catalytic reaction and generates the power to water and the adjustable external electric load 46 here. In a facility of drawing 3, the inlet-port oxidizer style 56 is a deadlock substantially, the oxygen by which this is supplied to the cathode of pile 40 of a fuel cell is consumed completely substantially in the activity partition 44, and, so, the stoichiometry of oxygen is essentially 1.0. The oxygen purge style 58 which has the cathode and fluid free passage relation under pile 40 of a fuel cell offers a means to eliminate the accumulated impurity periodically. The oxygen purge style 58 is started by actuation of the purge valve 60 which has usually stopped flow.

The cooling agent subsystem of the facility 10 in drawing 3 is started with the water 72 in the reservoir of an eliminator 70. The reservoir stream 74 is sent in the style of [ 82 ] recirculated water, when the recirculated water valve 80 opens. If the purge water bulb 76 is opened, some water from the reservoir style 74 will be sent as a wastewater style 78, and superfluous water will be extracted outside by this. The recirculated water style 82 is sent to the recirculated water style 86 compressed through the water cycle pump 84. Subsequently a stream 86 is sent to the water inlet-port style 90 through the deionization filter 88. The water in the inlet-port style 90 is a desirable cooling fluid for the activity partition 44 of pile 40 of a fuel cell. Once this cooling water passes through the activity partition 44, it will approach cell temperature and, so, will serve as a desirable source for the humidification partition 42 of pile 40 of a fuel cell. After passing through the humidification partition 42, a stream is sent to a heat exchanger 94 via the outlet stream 92, and turns into the stream 96 which heat was removed from water here and got cold. Subsequently to a water separator 70, the cold stream 96 is sent and participates in condensation of water from the outlet fuel style 18 here.

Drawing 4 is the 2nd example of the fuel cell generation-of-electrical-energy facility 110 which includes water separation in an anode. Facility 110 uses the pure hydrogen source of supply 112 and the source 154 of oxygen content air supply substantially as a source of reagent. The pile 140 of the fuel cell of the facility 110 which supplies power to the adjustable external load 146 including the humidification partitions 142 and 144 is substantially [ as the pile 40 of the fuel cell of drawing 3 ] the same. The facility 110 as well as the facility 10 of drawing 3 contains each subsystem of a fuel, an oxidizing agent, and a cooling agent.

The fuel subsystem of the facility 110 of drawing 4 is the same as the fuel subsystem of the facility 10 of drawing 3, and the flow 114, 116, 118, 120, 124, and 130 of drawing 4 corresponds, respectively with the flow 14, 16, 18, 20, 24, and 30 of the facility 10 of drawing 3, and has the same function. Similarly, the pile 140 of the fuel cell of drawing 4 has the activity partition 144 and the humidification partition 142, supplies power to the adjustable external load 146, and is substantially [ as the pile 40 of the fuel cell of drawing 3 ] the same. Similarly, the pressure

preparation valve 113, the water separator 170, the hydrogen recycling compressor 122, the deionization filter 126, and check valve 128 of drawing 4 are equivalent to the bulb 13, the eliminator 70, the compressor 22, the filter 26 for deionization, and check valve 28 of facility 10 in drawing 3, respectively, and have the same function.

The oxidizing agent subsystem of the facility 110 of drawing 4 departs from the source 154 of oxygen content air supply, and this source of supply 154 is sent in the style of [ 156 ] an inlet-port oxidizing agent through a compressor 155 and a pressure controller 157. The inlet-port oxidizer style 156 is supplied to the fuel cell 140 using the comparatively low oxygenation study stoichiometry of about 1.1–2.0. The inlet-port oxidizer style 156 included in the pile 140 of a fuel cell is humidified in the humidification partition 142, subsequently is sent to two or more MEA(s) of each under activity partition 144, and the oxygen in the air humidified here participates in electrode catalytic reaction, and it produces the power to water and the adjustable external load 146. The outlet oxidizer style 158 is open for free passage as the cathode and fluid under pile 140 of a fuel cell. The flow which passes along the outlet oxidizing agent style 158 flows by actuation of a bulb 160, and discharges 159. The water in outflow 159 precedes emitting outflow from this facility, and is separated into arbitration from gas constituents as in an eliminator 170. The cooling subsystem of the facility 110 of drawing 4 is substantially [ as the cooling subsystem of the facility 10 of drawing 3 ] the same, and the flow 174, 178, 182, 186, and 190 of the facility 110 of drawing 4 corresponds, respectively with the flow 74, 78, 82, 86, and 90 of the facility 10 of drawing 3, and has the same function. Similarly, in a heat exchanger 94, a heat exchanger 194 corresponds, respectively and has [ at the bulbs 176 and 180 of the facility 110 of drawing 4 the water recirculation pump 184, and deionization filter 188 list ] the same function the bulbs 76 and 80 of the facility 10 of drawing 3, a pump 84, and deionization filter 88 list.

Drawing 5 is the 3rd example of the fuel cell generation-of-electrical-energy facility 210 which includes water separation in an anode. Facility 210 uses the hydrogen source of supply 212 impure as a source of reagent, and the oxygen supply 254 pure on a real target. The pile 240 of the fuel cell of the facility 210 which supplies power to the adjustable external load 246 including the humidification partitions 242 and 244 is substantially the same as the piles 40 and 140 of drawing 3 and the fuel cell of 4 respectively. The facility 210 as well as drawing 3 and the facilities 10 and 110 of 4 contains each subsystem of a fuel, an oxidizing agent, and a cooling agent, respectively.

The oxidizing agent subsystem of facility 210 is substantially [ as it of the facility 10 of drawing 3 ] the same. The flow 256 and 258 of the facility 210 of drawing 5 It corresponds with the flow 56 and 58 of the facility 10 of drawing 3, respectively. The facility 210 of drawing 5 substantially the pure oxygen supply 254 It corresponds to the oxygen supply 54 of the facility 10 of drawing 3, and the bulbs 255 and 260 of the facility 210 of drawing 5 are equivalent to the bulbs 55 and 60 of the facility 10 of drawing 3, and it has the same function.

The cooling subsystem of the facility 210 of drawing 5 is substantially [ as the cooling subsystem of the facility 10 of drawing 3 ] the same, and the flow 274, 278, 282, 286, and 290 of the facility 210 of drawing 5 corresponds, respectively with the flow 74, 78, 82, 86, and 90 of the facility 10 of drawing 3, and has the same function. Similarly, in a heat exchanger 94, a heat exchanger 294 corresponds, respectively and has [ at the bulbs 276 and 280 of the facility 210 of drawing 5 the water recirculation pump 284, and deionization filter 288 list ] the same function the bulbs 76 and 80 of the facility 10 of drawing 3, a pump 84, and deionization filter 88 list.

The fuel subsystem of the facility 210 of said drawing 5 begins from the source of supply 212 of impure hydrogen. This impure hydrogen is obtained from conversion to other by-products like a carbon dioxide and the carbon monoxide of the amount of traces by the hydrogen list of a hydrocarbon. The impure hydrogen source of supply 212 supplies the inlet-port fuel style 216 through the pressure preparation valve 213 as shown in drawing 5. The inlet-port fuel style 216 is supplied to the pile 240 of a fuel cell using the comparatively big pressure drop between the inlet-port fuel style 216 to a fuel cell 240, and the outlet fuel style 218. The inlet-port fuel style 216 included in the pile 240 of a fuel cell is humidified in the humidification section 242, subsequently is sent to two or more MEA(s) of each of the activity partition 244, oxidizes to the electrode catalytic reaction in the flow which was impure here and was humidified, and produces



the power to water and the adjustable external load 246. In addition to the water from humidification of the opening fuel style 216, the outlet fuel style 218 which comes out of the pile 240 of a fuel cell is accumulated in a cathode, crosses the film according to a concentration gradient, can draw it near to an anode, and contains the generation water absorbed as water into the hydrogen style which circulates through the activity partition 244.

The outlet fuel style 218 is sent to a water separator 270, and this eliminator consists of steamy space 273 for collecting the storage containers and gas for collecting the condensed water 272 preferably as further shown in drawing 5 . The gas obtained except for water in the eliminator 270 is discharged from facility 210.

Drawing 6 is the 4th example of the fuel cell generation-of-electrical-energy facility 310 which includes water separation in an anode. Facility 310 uses the hydrogen source of supply 212 impure as a source of reagent, and the source 254 of oxygen content air supply. The pile 340 of the fuel cell of the facility 310 which supplies power to the adjustable external load 346 including the humidification partitions 342 and 344 is substantially the same as the piles 40,140 and 240 of drawing 3 and the fuel cell of 4 and 5 respectively. The facility 310 as well as drawing 3 and the facilities 10,110 and 210 of 4 and 5 contains each subsystem of a fuel, an oxidizing agent, and a cooling agent, respectively.

The fuel subsystem of the facility 310 of drawing 6 is substantially [ as the fuel subsystem of the facility 210 of drawing 5 ] the same, and the flow 316, 318, and 320 of the facility 310 of drawing 6 corresponds with the flow 216, 218, and 220 of the facility 210 of drawing 5 , respectively. The impure source 312 of hydrogen of the facility 310 of drawing 6 , a pressure controller 313, and a water separator 370 are equivalent to the impure source 212 of hydrogen of the facility 210 of drawing 5 , a pressure controller 213, and a water separator 270, and have the same function. The oxidizing agent subsystem of the facility 310 of drawing 6 is substantially [ as the oxidizing agent subsystem of the facility 110 of drawing 4 ] the same, and the flow 356, 358, and 359 of the facility 310 of drawing 6 corresponds with the flow 156, 158, and 159 of the facility 110 of drawing 4 , respectively.

Similarly, the air supply 354, the compressor 355, the pressure controller 357, and bulb 360 of the facility 310 of drawing 6 are equivalent to the air supply 154, the compressor 155, the pressure controller 157, and bulb 160 of the facility 110 of drawing 4 , and have the same function.

The cooling subsystem of the facility 310 of drawing 6 is substantially [ as the cooling subsystem of the facility 10 of drawing 3 ] the same, and the flow 374, 378, 382, 386, and 390 of the facility 310 of drawing 6 corresponds, respectively with the flow 74, 78, 82, 86, and 90 of the facility 10 of drawing 3 , and has the same function. Similarly, in a heat exchanger 94, a heat exchanger 394 corresponds, respectively and has [ at the bulbs 376 and 380 of the facility 310 of drawing 6 the water recirculation pump 384, and deionization filter 388 list ] the same function the bulbs 76 and 80 of the facility 10 of drawing 3 , a pump 84, and deionization filter 88 list.

Generally with reference to drawing 7 , the assembly components of savings of the fuel cell of the type referred to as piles 40,140,240 and 340 of a fuel cell here drawing 3 -6, respectively are shown as a decomposition assembly Fig. The pile assembly article 410 of a fuel cell has the end plates 411 and 412 of a pair, and these are 411 and the compression end plate 412 with sufficient convenience in a fluid end plate, respectively. Plates 411 and 412 make the end of the assembly object 410 of a pile. The coupling rod 415 penetrated among the end plates 411 and 412 is extended. A coupling rod 415 is held in the condition that bound tight, put and assembled with the coupling rod nut 445, and elegance 410 was assembled.

The electric insulation plate 414 is arranged inside the end plate 411. The piston 417 is arranged in the end plate 412. As shown in drawing 7 , the bus plates (bus plate) 420 and 421 are arranged at the edge at which the activity partition of the pile assembly object 410 faces, and electricity is supplied to external electric load (not shown) in the current generated with the pile assembly object 410. cooling water jackets 422 and 423 — the bus plates 420 and 421 — it is arranged immediately inside.

Generally this pile assembly object 410 includes the activity partition shown by 424, and the humidification partition generally shown by 430. Including the assembly object with the plurality

same [ said activity partition 424 / which it was generally shown by 431 in addition to the bus plates 420 and 421 and cooling water jackets 422 and 423 ], each assembly object consists of three fluid flow field plates 432, 433, and 434 and two membrane electrode assembly objects (MEA) 440, and this membrane electrode assembly object intervenes among the flow field plates 432, 433, and 434. the fuel with which the leftmost flow field plate 432 turned the form of pure hydrogen gas on the one side substantially in each assembly object 431 — conveying — arbitration — the conduit of the opposite side of a plate 432 — a cooling fluid is conveyed inside. MEA440 is made to intervene among plates 432 and 433. The central flow plate 433 conveys hydrogen for pure oxygen gas or oxygen content air to the opposite side substantially at 1 side. An oxidizer is conveyed to arbitration and the rightmost plate 434 conveys a cooling fluid (preferably water) to the opposite side of a plate 434 at the side which adjoins MEA440. If the configuration of this assembly object 431 arranges and expects hydrogen and an oxidizer to each opposite side of MEA440, it will adjoin each MEA and will arrange a cooling fluid plate. This configuration is extended through the activity partition 424 of pile 410 of a fuel cell. The humidification partition 430 of pile 410 of a fuel cell contains two or more oxidizer humidification style field plates 441 generally located on the left-hand side of the humidification partition 430 shown in drawing 7 , and two or more fuel humidification style field plates 442 generally located on the right-hand side of this humidification partition 430. the humidification partition 430 — respectively — between the fuel humidification style field plate 442 and the oxidizer humidification style field plates 441 — two or more fuel humidification film 437 and two or more oxidizer humidification film 436 — it has. Although explained, since the special element of this invention, an example, and application are shown, this contractor can change and a change can be especially made from the above-mentioned contents of an indication, of course, it will be understood that this invention is not what is limited to these. An attached claim is considered including the mode belonging to the pneuma and the range of this invention.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JP0 and NCIP1 are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

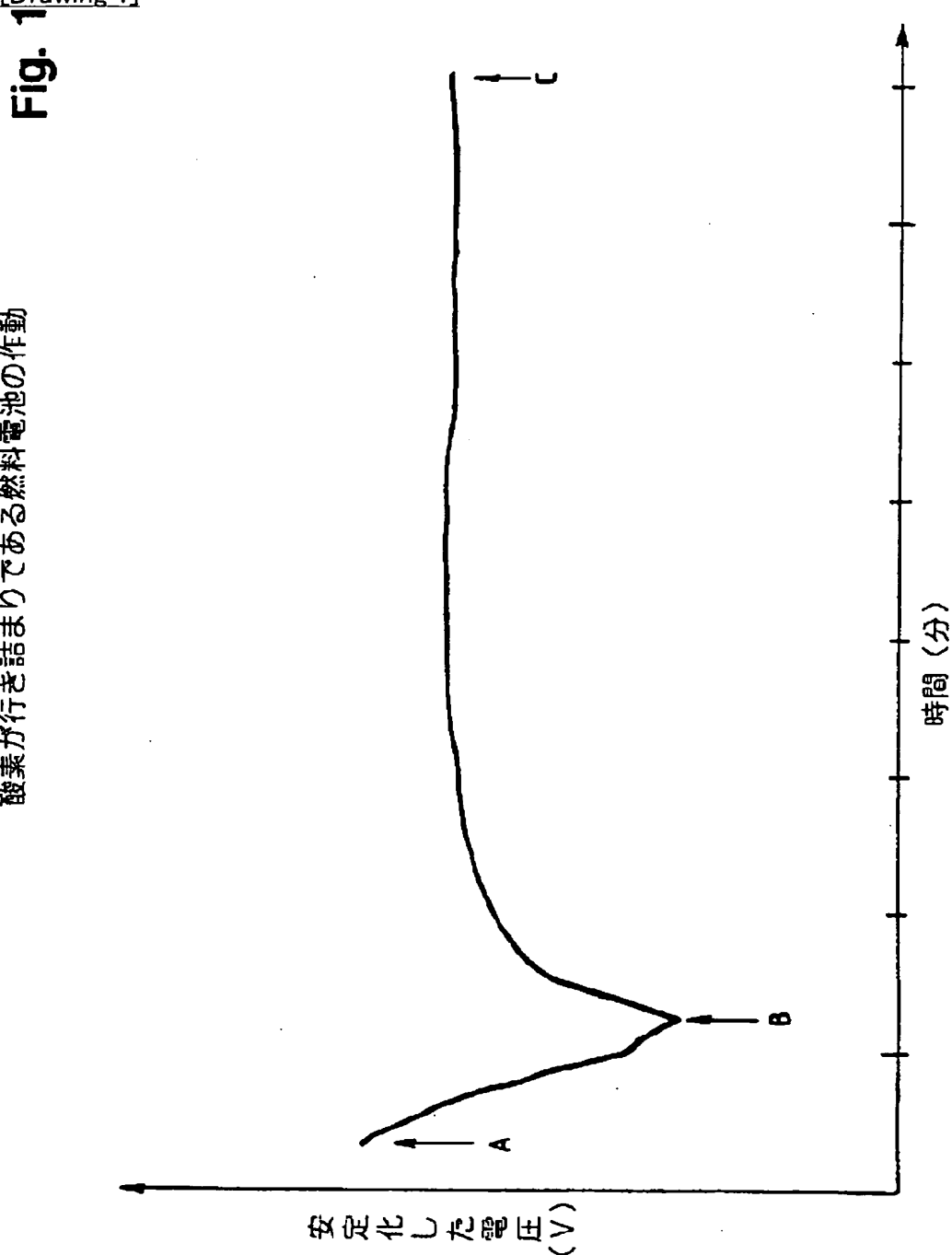
---

DRAWINGS

---

[Drawing 1]

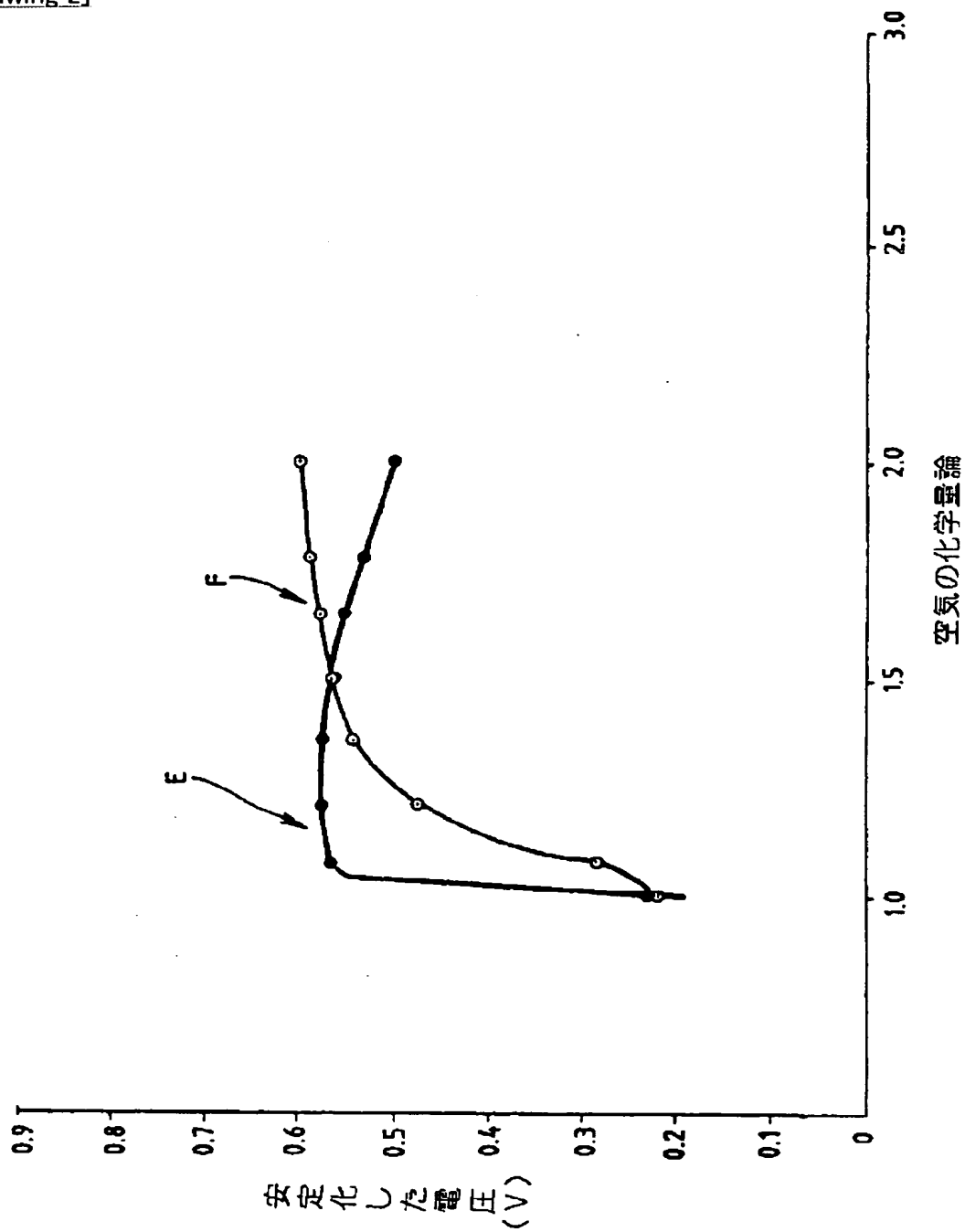
酸素が行き詰まりである燃料電池の作動



[Drawing 2]

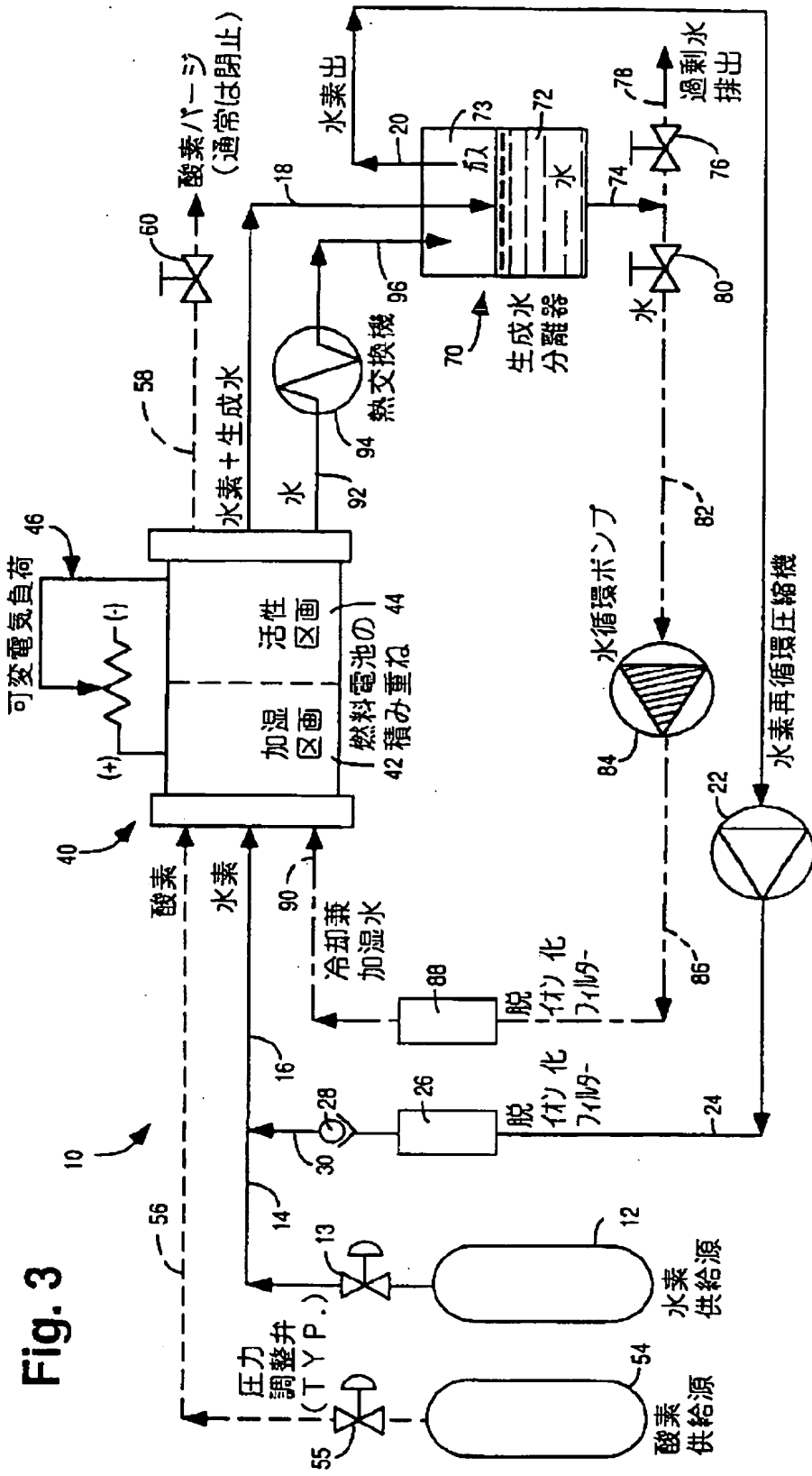
Fig. 2

低空気化学量論での燃料電池の作動



[Drawing 3]

Fig. 3



**Fig. 4** <sub>110</sub>

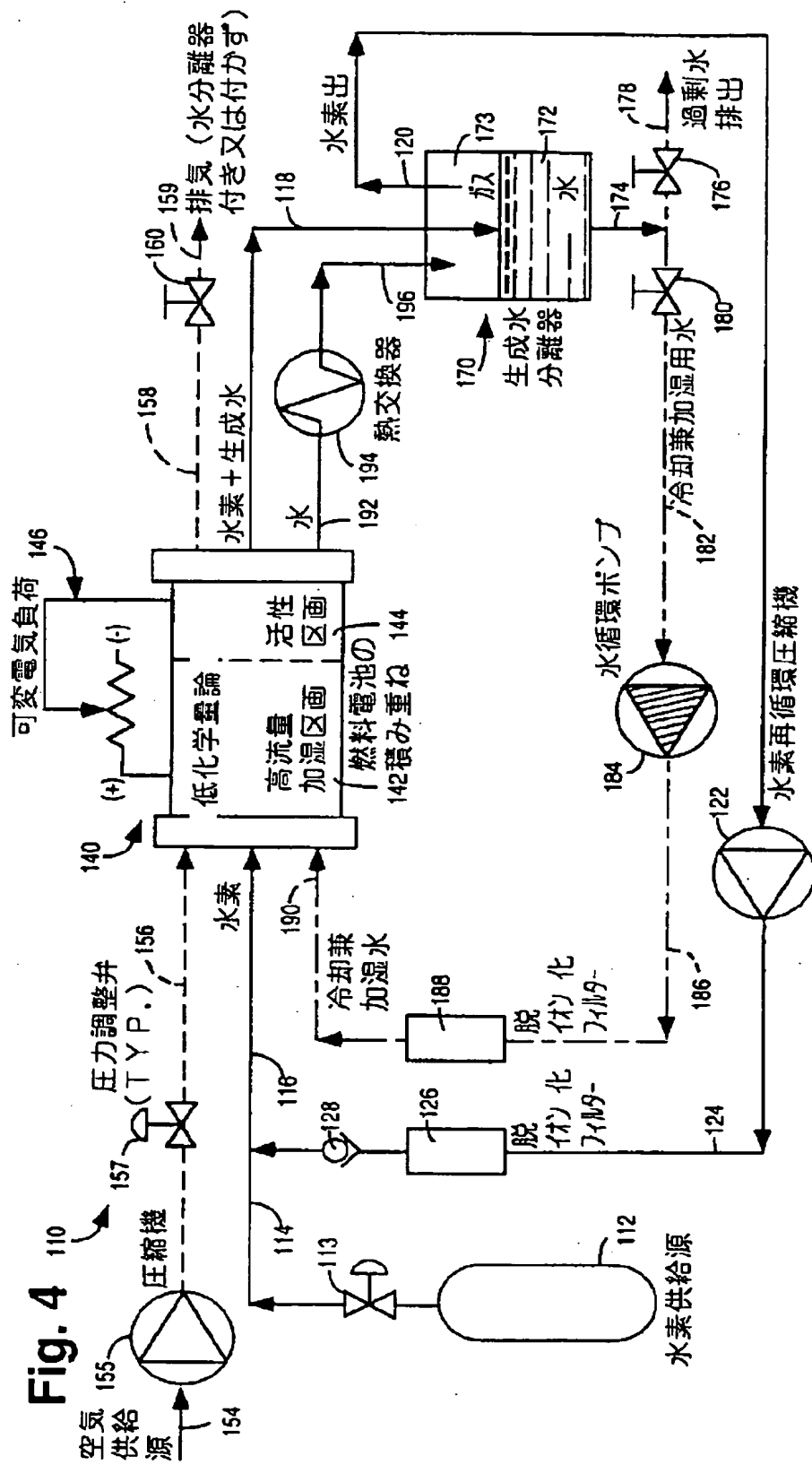
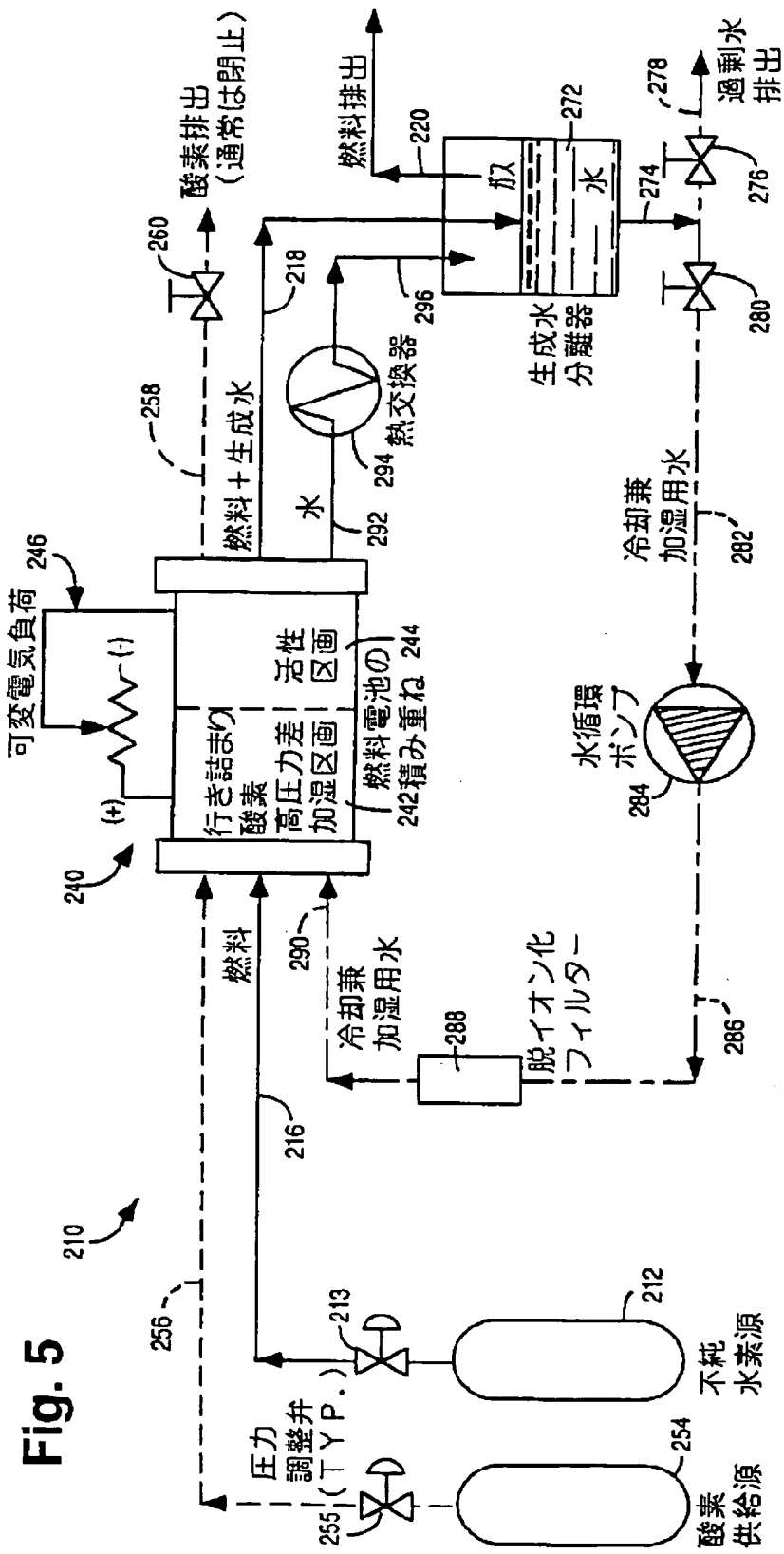


Fig. 5



[Drawing 6]

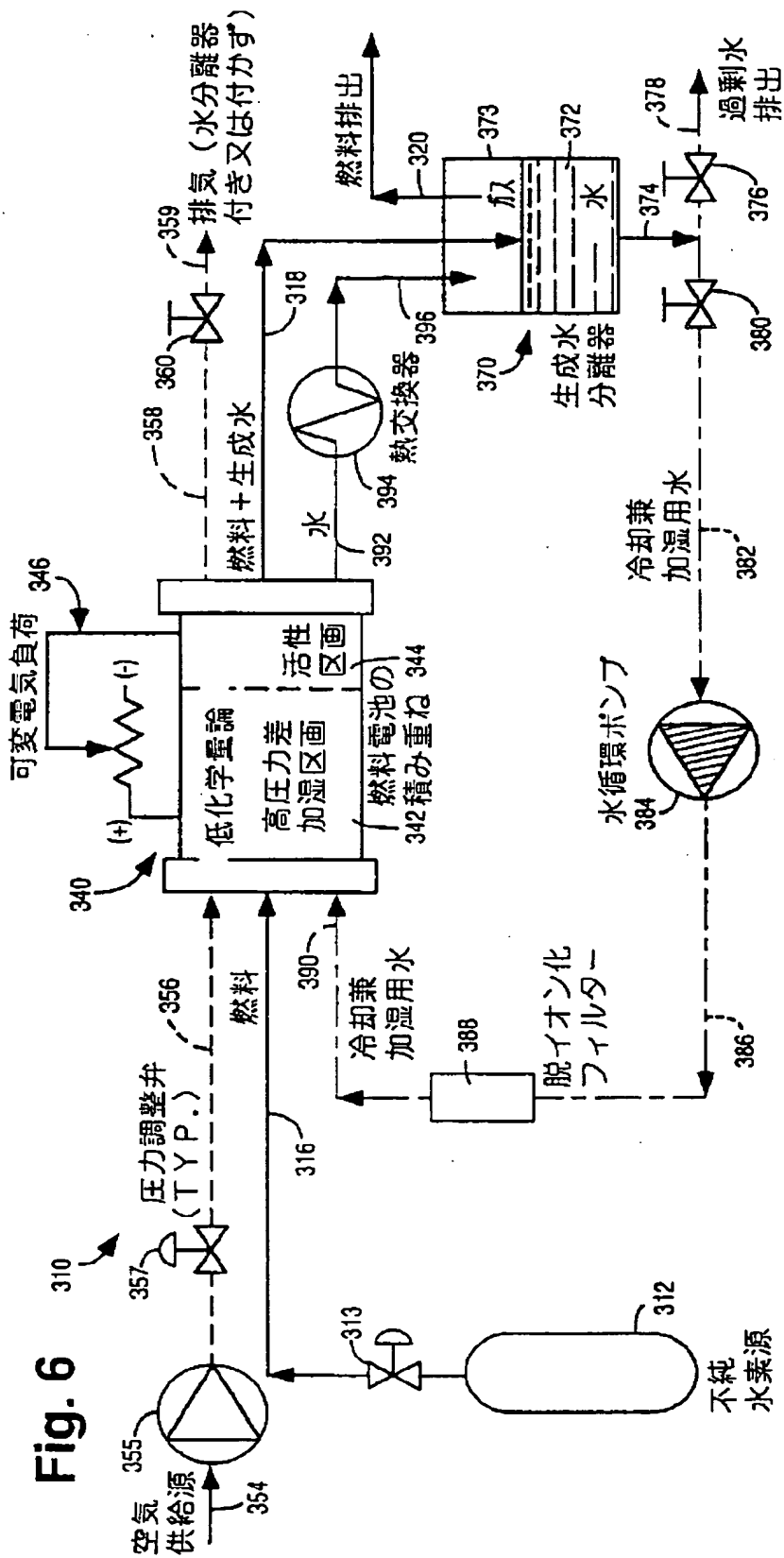




Fig. 7

